

LASERAKTIVITÄT, PHASENÜBERGÄNGE UND BISTABILITÄT VON KERNSPINS IN FESTKÖRPERN

INAUGURAL-DISSERTATION

zur Erlangung
der philosophischen Doktorwürde

vorgelegt der
Philosophischen Fakultät II
der Universität Zürich

von
DIETER MEIER
von Unterkulm AG

Begutachtet von Herrn Prof. Dr. E. Brun

Zürich 1981
Zentralstelle der Studentenschaft

LASERAKTIVITÄT, PHASENÜBERGÄNGE UND BISTABILITÄT VON KERNSPINS IN FESTKÖRPERN

INAUGURAL-DISSERTATION

zur Erlangung
der philosophischen Doktorwürde

vorgelegt der
Philosophischen Fakultät II
der Universität Zürich

von
DIETER MEIER
von Unterkulm AG

Begutachtet von Herrn Prof. Dr. E. Brun

Zürich 1981
Zentralstelle der Studentenschaft





Digitized by the Internet Archive
in 2026

INHALTSVERZEICHNIS

1. EINLEITENDE BETRACHTUNGEN	5
1.1. Der Rubinraser: ein Modellsystem der Synergetik	5
1.2. Stationäres Verhalten eines idealisierten Spin $\frac{1}{2}$ -System	7
1.3. Zum Inhalt dieser Arbeit	10
2. GRUNDLAGEN	12
2.1. Experimentelle Details	12
2.1.1. Die Spinsysteme in Rubin	12
2.1.2. Apparative Aspekte	14
2.1.2.1. Aufbau der DNP Apparatur und Detektionseinheit für NMR-Signale	14
2.1.2.2. Experimentelle Anordnung für den Raser	15
2.2. Rasergleichungen	17
2.2.1. Der 2-Niveau Raser	18
2.2.2. Herleitung der 2-Niveau Rasergleichungen	19
3. STATIONÄRES VERHALTEN	26
3.1. Stationäre Lösungen und Raserpotential	26
3.2. Unterkritisches Verhalten	33
3.3. Stabilität und Parameterabhängigkeit der Raserfrequenz	36
4. DYNAMIK DES RUBINRASERS	40
4.1. Einschwingvorgang des schwach gepumpten Rasers	40
4.1.1. Kurzzeitverhalten	40
4.1.2. Mittel- und langfristiges Verhalten	44
4.2. Kurzzeitverhalten des stark gepumpten Rasers	49

5. WECHSELWIRKUNG DES LASERS MIT EINEM AUSSENN RESONANZFELD	59
5.1. Stabilität stationärer Zustände im äusseren Resonanzfeld	59
5.2. Phasenübergang 1.Ordnung	63
5.3. Dynamik des Phasenübergangs 1.Ordnung	67
5.3.1. Apparatives	67
5.3.2. Experimente	69
ZUSAMMENFASSUNG	74
LITERATURVERZEICHNIS	76

1. EINLEITENDE BETRACHTUNGEN

1.1. Der Rubinraser: ein Modellsystem der Synergetik

Wird ein Rubin Einkristall ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{3+}$) mit Mikrowellen in der Nähe der zentralen Frequenz einer ESR-Linie bestrahlt, so können die Spins der Aluminiumkerne durch dynamische Kernspinpolarisation (DNP) auf eine negative absolute Temperatur (Spin-temperatur) gebracht werden; es kommt zur Spininversion. Die Bewegungen der einzelnen Spins sind dabei weitgehend ungeordnet. Die resultierende magnetische Dipolstrahlung ist inkohärent und kann nicht direkt nachgewiesen werden.

Bei der Suche nach möglichst tiefen, negativen Temperaturen, im Bereich von einigen Millikelvin, sind wir /1-3/ auf das interessante Phänomen der Superradianz oder Laseraktivität dieses Kernspinsystems gestossen. Bei erhöhter Spininversion und bei Anwesenheit eines abgestimmten LC-Kreises (der die Rolle der Spiegel eines Lasers spielt) ändert sich das Verhalten der ^{27}Al -Spins schlagartig. Oberhalb einer bestimmten Schwelle beginnen sich ihre Bewegungen spontan zu ordnen, wobei durch die induktive Kopplung der Spins mit dem Resonanzkreis ein kohärentes Strahlungsfeld aufgebaut wird. Das Spinsystem emittiert dann starke monochromatische Radiowellen. Der Rubin wird so zum NMR-Laser oder kurz zum RASER (radiowave amplification by stimulated emission of radiation).

Die Erklärung dieses markanten Phänomens einer selbstinduzierten kollektiven Spinordnung geht von der Vorstellung aus, dass die Dynamik eines Rasers durch zwei sich konkurrenzierende Prozesse bestimmt ist: einerseits sind es dissipative (Relaxationen), die das System zur Unordnung treiben, andererseits sind es kooperative, die die individuellen Spins zu kollektiven Bewegungen zwingen. Die Mikrowellen (als Pumpmechanismus) kontrollieren die Spininversion und spielen so das Zünglein an der Waage. Ueberwiegt die Dissipation, kommt es zur Unordnung; überwiegt die Kooperation, erfolgt ein spontaner Uebergang in einen geordneten Zustand mit beobachtbaren makroskopischen Merkmalen: den Ordnungsparametern.

Zu den bemerkenswerten Resultaten gehört die Erkenntnis, dass der Raser stellvertretend für eine ganze Reihe sehr verschiedener Phänomene steht, die ähnliche Gesetzmässigkeiten befolgen. Es sind dies die Ordnungserscheinungen von Vielteilchensystemen mit ihren Instabilitäten und Phasenübergängen 1. und 2. Ordnung wie sie beispielsweise bei Ferromagneten, Kristallwachstum, Wolkenbildung, dissipativen Strukturen chemischer Reaktionen, Nerven-erregungen, politischer Willensbildung, Populationsdynamik u.a.m. beobachtet werden können. Sie alle sind Gegenstand der Synergetik, einer interdisziplinären Forschungsrichtung, die von Haken /4/ begründet worden ist und bei der das Problem der kooperativen Selbstordnung innerhalb eines Vielteilchensystems im Zentrum des Interesses steht.

Unter geeigneten Bedingungen besitzen synergetische Systeme kritische Punkte, wo sie instabil werden und es zu Unordnungs- Ordnungsübergängen kommt. Verantwortlich dafür sind die Kopplungen zwischen den Individuen des Vielteilchensystems und den Individuen an die Umgebung (offene Systeme). In der ungeordneten Phase sind ihre Wirkungen stochastischer Natur. Mögliche innere Ordnungen, die Korrelationen, werden abgebaut; aber - und dies ist das Entscheidende - nicht völlig zerstört. Es verbleiben die Fluktuationen. In der Umgebung eines kritischen Punktes beginnen die Fluktuationen anzuwachsen. Es kommt zu kollektiven Wechselwirkungen und spontan erfolgt der Uebergang in die geordnete Phase. Die einzelnen Teile verlieren dabei sozusagen ihre Individualität; sie gehorchen von nun an einer innern Befehlsstelle, die für die Aufrechterhaltung der Ordnung - für die Versklavung, wie Haken so treffend bemerkt - sorgt. Ein Mass für deren Stärke sind die Ordnungsparameter.

Das Reizvolle am Raser liegt darin, dass seine Ordnungsparameter einerseits experimentell gut messbar und andererseits theoretisch erfassbar sind. Es ist dieses Wechselspiel von Experiment und Theorie, das den Raser für die Synergetik bedeutungsvoll macht, und das in den verschiedenen Kapiteln dieser Arbeit diskutiert wird.

1.2. Stationäres Verhalten eines idealisierten Spin $\frac{1}{2}$ -Systems

Wie wir bemerkt haben, wird das Verhalten des Rasers durch die Mikrowellenpumpe kontrolliert, denn ihre Stärke bestimmt die Spininversion. Um ein quantitatives Mass für die Wirkung der Pumpe zu erhalten, führen wir einen Pumpparameter p ein, den wir im folgenden definieren wollen.

Wir betrachten ein Kernspinsystem mit den magnetischen $\Delta m = \pm 1$ Dipolübergängen in einem statischen Magnetfeld B_0 . Spinsysteme mit $I > \frac{1}{2}$ transformieren wir in fiktive Spin $\frac{1}{2}$ -Systeme /5/, so dass ein NMR-Uebergang als eine Spinumklappung innerhalb eines 2-Niveau Systems aufgefasst werden darf. Wir setzen weiter voraus, dass die Resonanzfrequenz des LC-Kreises exakt mit der Larmorfrequenz der Spins übereinstimmt, d.h. wir beschränken unsere Betrachtungen auf den Fall absorptiver und homogen verbreiteter Resonanzen. Die Ordnungsparameter des Spinsystems sind die rotierende Quermagnetisierung M_V und die longitudinale Kernmagnetisierung M_Z . Wir nehmen ferner an, dass M_V und M_Z Blochgleichungen genügen, d.h. dass ein frei rotierendes M_V exponentiell mit der Zeitkonstanten T_2 zerfällt und das M_Z mit einer charakteristischen Relaxationszeit T_e gegen einen stationären Wert M_e der Längsmagnetisierung hinstrebt. M_e wird durch die Mikrowellenpumpe bestimmt und kann sowohl positive Werte (bei positiver Spintemperatur) wie auch negative Werte (bei negativer Spintemperatur) annehmen. Die longitudinale Relaxation ist in unserer Vorstellung bestimmt durch die Kopplung der Kernspins an ein Reservoir von Spinenergie (das elektronische Wechselwirkungsreservoir), dessen Temperatur durch die Mikrowellenpumpe reguliert wird.

Für die stationären Ordnungsparameter ohne Berücksichtigung der Fluktuationen reduzieren sich die Blochgleichungen in einem rotierenden Feld zu

$$M_V \cdot \omega_t = M_V / T_2 \quad (1.1a)$$

$$M_Z \cdot \omega_t = (M_e - M_Z) / T_e \quad . \quad (1.1b)$$

In Frequenzeinheiten ausgedrückt ist ω_t das totale Hochfrequenzfeld, das auf die Spins wirkt und das im allgemeinen aus dem Reaktionsfeld ω_r der Spins und einem von aussen überlagerten Feld ω_d zusammengesetzt ist. Für die folgenden Betrachtungen legen wir die positive u-Achse unseres Koordinatensystems in die Richtung des äussern Feldes ω_d . Im rein absorptiven Zustand liegt die Richtung des Reaktionsfeldes ebenfalls entlang der u-Achse. Sind die beiden Felder ω_r und ω_d in Phase (also parallel), so sprechen wir von einer kooperativen Feldkonfiguration, sind sie 180° ausser Phase liegt eine kompetitive Konfiguration vor.

Somit gilt

$$\omega_t = \omega_r + \omega_d \quad . \quad (1.2)$$

Den Zusammenhang zwischen dem Reaktionsfeld und der makroskopischen Magnetisierung M_v liefert das Induktionsgesetz:

$$\omega_r = -\frac{1}{2}\mu_0 \gamma \eta Q M_v \quad , \quad (1.3)$$

wo η der Füllfaktor und Q der Gütefaktor des Schwingkreises sind.

Wir definieren die kritische Längsmagnetisierung

$$M_k = \frac{2}{\mu_0 \gamma \eta Q T_2} \quad , \quad (1.4)$$

und bezeichnen das Verhältnis zwischen Pumpmagnetisierung M_e und M_k als den gewünschten Pumpparameter

$$p = \frac{M_e}{M_k} \quad . \quad (1.5)$$

Das Vorzeichen von p ist durch das Vorzeichen von M_e bestimmt, da nach (1.4) M_k immer positiv ist.

Mit der Substitution

$$X = \omega_t \sqrt{T_e T_2} \quad (1.6a)$$

$$Y = \omega_d \sqrt{T_e T_2} \quad (1.6b)$$

ergeben sich dimensionslose Grössen für das totale Feld X und das äussere Feld Y . Unter Verwendung der Beziehungen (1.2) bis (1.6) erhalten wir aus dem Gleichungssystem (1.1) folgende universelle Relation für die stationären Lösungen der beiden Felder

$$Y(X) = X + \frac{p X}{1 + X^2} \quad . \quad (1.7)$$

Mit $p = 2C$, erhalten wir für positive Pumpparameter die identische Gleichung, wie sie in den Arbeiten über optische Bistabilität von verschiedenen Autoren /6-12/ verwendet wird. Diese, ursprünglich von Bonifacio und Lugiato /6/ eingeführte universelle Beziehung ist von Lugiato in einer Arbeit von 1978 /13/ auch für negative Pumpparameter erweitert worden. Mit $p = -A$, geht es um das Verhalten eines Lasers, der mit einem resonanten elektromagnetischen Feld in Wechselwirkung steht. Diese Situation, die bisher nur theoretisch behandelt wurde, steht in einem engen Zusammenhang zu den von uns durchgeführten Experimenten mit dem Raser, der von einem resonanten Hochfrequenzfeld gestört wird. Auf die Gemeinsamkeiten und Unterschiede dieser beiden Beispiele werden wir im 5. Kapitel näher eingehen.

Aus der Gleichung (1.7) können wir 2 Gebiete mit Bistabilität abgrenzen. Der Bereich $p > 8$ entspricht der optischen Bistabilität, derjenige mit $p < -1$ der Raser-(oder Laser) Bistabilität. Im Zwischengebiet $-1 < p < 0$ finden wir das unterkritische Verhalten eines invertierten Spinsystems, wo für $p \rightarrow -1$ "critical narrowing", eine Verschmälerung der Absorptionslinien, beobachtet werden kann. Der umgekehrte Effekt, eine Verbreiterung der Linien taucht im Gebiet $0 < p < 8$ auf.

Die stationären Lösungen $X(Y)$, wie sie aus der universellen Gleichung (1.7) berechnet werden können, sind für verschiedene positive und negative Werte des Pumpparameters p in Figur 1.1 aufgezeichnet.

Wählen wir $Y=0$, erhalten wir die stationären Zustände des freischwingenden Rasers. Aus der Gleichung (1.7) berechnet sich die

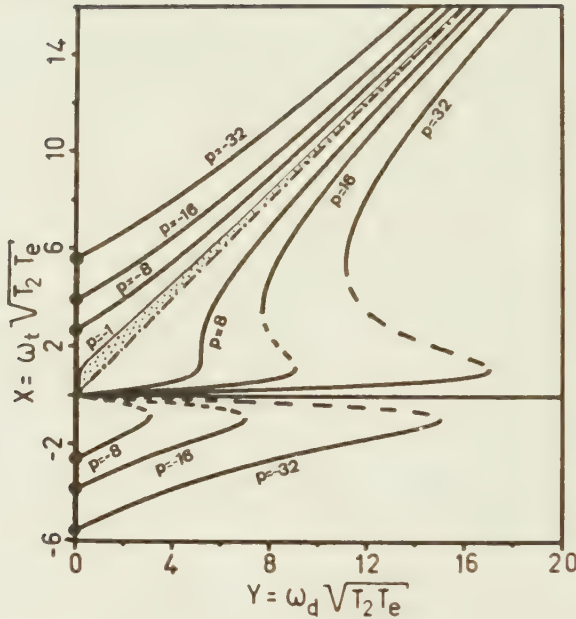


Fig.1.1: Stationäre Lösungen des totalen Feldes als Funktion des äusseren Feldes für verschiedene Pumpparameter p .

Lösung für das Reaktionsfeld zu

$$X_r(Y=0) = \sqrt{-1-p} \quad . \quad (1.8)$$

Der Wert $p=-1$ bzw. $M_e = -M_k$ stellt die Schwellenbedingung für den Raser dar.

1.3. Zum Inhalt dieser Arbeit

In den nächsten Kapiteln wollen wir nun das spezifische Verhalten unseres Rubinrasers theoretisch und experimentell untersuchen. Dazu sind im zweiten Kapitel die wesentlichen experimentellen und theoretischen Grundlagen unseres Systems zusammengestellt.

Im 3.Kapitel diskutieren wir nebst dem unterkritischen Verhalten ("critical narrowing") die Charakteristik des stationären Zustands des frei schwingenden Rasers. Im gleichen Kapitel behandeln wir den Uebergang vom nicht strahlenden Zustand ($X_r=0, Y=0$) in den strahlenden Zustand ($X_r \neq 0, Y=0$), der einen Phasenübergang 2.Ordnung darstellt.

Die Dynamik dieses Uebergangs, der in Verbindung mit einem Wärmereservoirmodell beschrieben werden kann, ist das Thema des 4.Kapitels.

Ein Schwerpunkt dieser Arbeit sind die im 5.Kapitel beschriebenen Experimente und theoretischen Erklärungen des Rubinrasers, der in Wechselwirkung mit einem resonanten HF-Feld steht. Dabei werden nebst dem stationären Verhalten des bistabilen Zustands (mit $X \neq 0, Y > 0$) auch die Dynamik des Uebergangs von einem kompetitiven in einen kooperativen Zustand diskutiert und erklärt.

2. GRUNDLAGEN

2.1. Experimentelle Details

2.1.1. Die Spinsysteme in Rubin

Die Raseraktivität des Rubins, der in unserem Fall eine Cr^{3+} Konzentration von 0.013% aufweist, beruht auf der Wechselwirkung seiner magnetischen Ionen (Cr^{3+}) und den Atomkernen (^{27}Al) unter sich und mit äusseren Magnetfeldern. Sie hängt entscheidend ab von der spinbedingten Aufspaltung des elektronischen und nuklearen Grundzustands und damit, als Folge der Kristallfeldkopplung von Cr^{3+} mit Spin $S=3/2$ und ^{27}Al mit Kernspin $I=5/2$, von der Orientierung des Einkristalls relativ zum statischen äusseren Feld B_0 . Für den von uns gewählten festen Feldwert $B_0=1.1\text{T}$ sind die Uebergangsfrequenzen der magnetischen Dipolübergänge der Cr^{3+} Ionen und der ^{27}Al Kernspins in Funktion des Winkels δ zwischen der kristallographischen c-Achse und B_0 in Figur 2.1 widergegeben. Diese bestimmen die möglichen Pump- und Raserfrequenzen.

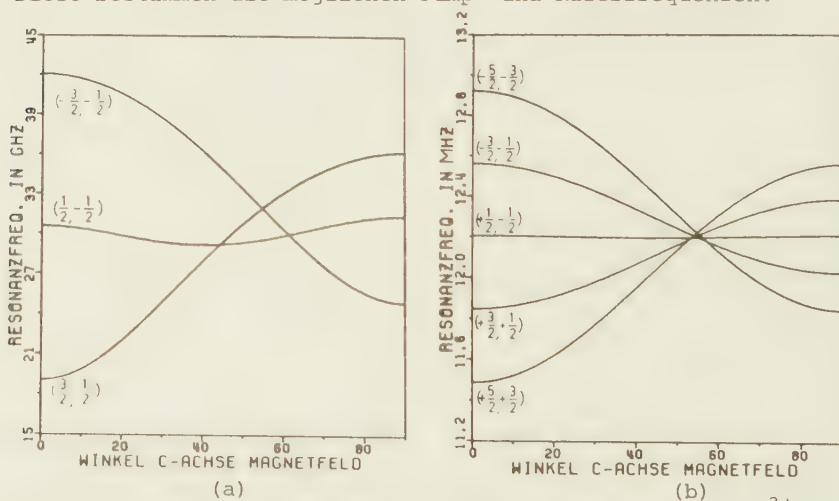


Fig.2.1: Resonanzfrequenzen der $\Delta m=\pm 1$ Uebergänge von Cr^{3+} (a) und ^{27}Al (b) in Funktion des Winkels zwischen Magnetfeld und c-Achse für $B_0=1.1\text{T}$.

Gute Pumpbedingungen des Mikrowellenfeldes liegen in der Nähe von Kreuzungspunkten der ESR-Linien. Optimal sind sie bei $\delta=60.4^\circ$, wo die Uebergangsfrequenzen zwischen den drei am stärksten bevölkerten Energieniveaus identisch werden.

Alle Raserexperimente haben wir bei einem festen Winkel $\delta=60.4^\circ$, den wir als Arbeitswinkel bezeichnen, und bei einer Gittertemperatur von 1.6 K durchgeführt.

Unter diesen Bedingungen kann das ^{27}Al Kernspinsystem auf eine Spintemperatur von -6mK erwärmt werden, was einer negativen Kernspinpolarisation von ca. 6% entspricht. In Figur 2.2 sind die relativen Besetzungszahlen der 6 nicht äquidistanten Kernspinniveaus dargestellt.

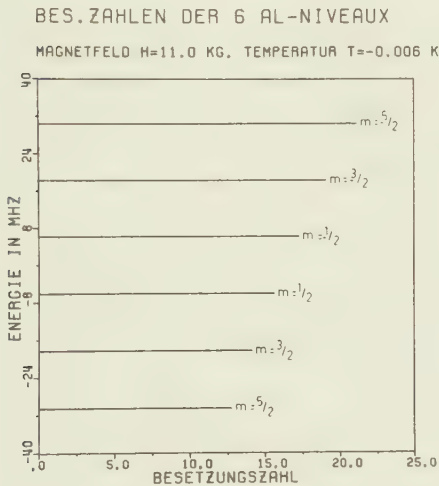


Fig.2.2: Relative Besetzungszahlen (in %) der 6 Energieniveaus von ^{27}Al bei $B_0=1.1\text{T}$ und einer Spintemperatur von -6mK.

Beim gewählten Arbeitswinkel sind die 5 NMR-Uebergänge mit $\Delta m=\pm 1$ gut aufgelöst. Der Abstand zwischen den Mittten zweier benachbarter Absorptionslinien beträgt ca. 50 kHz, wogegen die Linienbreiten um 10 kHz sind. Diese Tatsache gilt es im folgenden zu beachten und ist für Theorie und Experiment des Rasers von entscheidender Bedeutung. Auf diese Eigenschaft werden wir im Kapitel 2.2 noch detaillierter eingehen.

2.1.2. Apparative Aspekte

Anregung und Beobachtung der Raseraktivität geschieht mit Hilfe von zwei speziell entwickelten Instrumenten. Die benötigte Spininversion wird mit einem einfachen Mikrowellenspektrometer produziert und ihre Stärke mit einem NMR Q-Meter gemessen. Mit dieser im Abschnitt 2.1.2.1. beschriebenen Apparatur kann ein bestimmter Anfangszustand des Spinsystems erreicht werden, dem anschliessend unter kontrollierbaren Bedingungen spontan die Raseraktivität folgt. Das notwendige Steuer- und Detektionssystem wird im Abschnitt 2.1.2.2. diskutiert.

2.1.2.1. Aufbau der DNP Apparatur und Detektionseinheit für NMR-Signale

Die Apparatur setzt sich aus einem He-Kryostaten (Glasdewar) mit Probenhalterung, einem Varian 3400-Magneten mit Bruker Netzgerät, einem ESR- und einem NMR-Spektrometer zusammen.

Das ESR-Spektrometer, das als Mikrowellenpumpe dient, besteht aus einem luftgeköhlten Klystron vom Typ 30V12 der Firma OKI Electronics of America Inc. Auf mechanischem Weg kann die Frequenz von 28GHz bis 32GHz verändert werden. Die Mikrowellen gelangen über einen Isolator, einen Wellenlängenmesser, einen Präzisionsattenuator (0-50dB), einen Richtungskoppler, einen elektromechanischen Schalter und einen Chromstahlwellenleiter in die quaderförmige Multimodekavität. Die experimentell optimierte Anpassung zwischen Wellenleiter und der 13×13×50mm grossen Kavität erfolgt über eine Blende aus dünnem Kupferblech mit einem zentrischen ca. 2×7mm grossen Schlitz. Die maximale Mikrowellenleistung in der Kavität beträgt etwa 100mW. Nach Abkopplung durch einen Richtungskoppler wird die vom Hohlraum reflektierte Leistung auf einem Kathodenstrahloszilloskop beobachtet. Dieses Signal ist ein Mass für die im Kristall absorbierte Leistung der Mikrowellen.

Für die Detektion der Absorptionssignale der ²⁷Al Kernspins wird

ein Q-Meter /14/ verwendet. Ein Frequenzsynthesizer von Hewlett Packard (Typ 8660B) liefert die Hochfrequenzspannung. Diese Frequenz kann für Resonanzdurchgänge ("Sweep") intern oder extern mit einer Sägezahnspannung variiert werden. Gleichzeitig kann mit dieser Spannung der Resonanzkreis des Q-Meters über eine Varicapdiode abgestimmt werden. Das Ausgangssignal des Q-Meters wird mit einem phasensensitiven Verstärker (Lock-In Amplifier von Brookdeal Modell 401) in Phase mit der Modulationsfrequenz des Magnetfeldes verstärkt. Danach können die Signale mit einem "Nicolet Signal Averaging System 1020A" gespeichert werden, um sie anschliessend auf Lochstreifen zu stanzen oder mit einem x-y Schreiber zu registrieren.

Der wassergekühlte Varian Magnet wird von einem Bruker Netzgerät vom Typ B-MN 200/50 gespeist. Die Stabilisierung des Magnetfeldes beruht ausschliesslich auf der Stromstabilisierung des Netzgeräts, die im Kurzzeitbereich (5 Min) 5×10^{-6} und für längere Zeiten (10 h) 1×10^{-5} beträgt.

2.1.2.2. Experimentelle Anordnung für den Raser

Magnet und Mikrowellenteil sind gleich aufgebaut und eingesetzt, wie es im vorhergehenden Abschnitt beschrieben ist.

Der Schwingkreis, der für die ^{27}Al Resonanzfrequenzen konzipiert ist (v ca. 12.5 Mhz), besteht aus einer um den Kristall gewickelten Spule mit 15 Windungen und Parallelkapazitäten. Der Kristall mit Spule und einer festen Kapazität befinden sich in flüssigem Helium der Temperatur von 1.6 K. Der eigentliche Abstimmkondensator und eine Varicapdiode vom Typ BA 102 sind ausserhalb des Dewars angebracht. Mit einer äusseren Gleichspannung, die in Sperrrichtung an die Varicapdiode gelegt wird, kann die Kapazität dieser Diode verändert werden. Damit ändert sich auch die Resonanzfrequenz des Schwingkreises. Wird an Stelle einer konstanten Gleichspannung ein Rechteckpuls verwendet, kann die Resonanzfrequenz des Kreises innerhalb von Mikrosekunden verändert werden.

Diese Vorgehen entspricht der "Q-Switch" Technik bei Laser Experimenten.

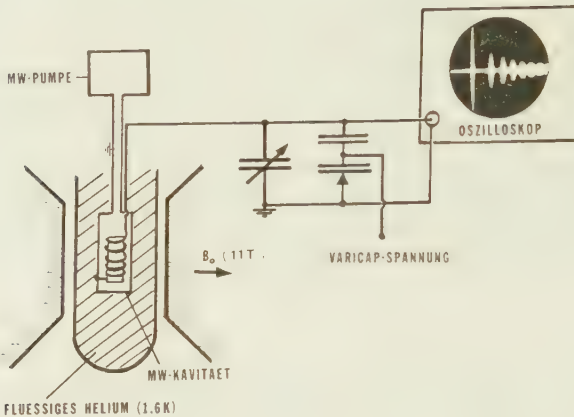


Fig.2.3: Experimentelle Anordnung für den Raser.

In Figur 2.3 sehen wir die schematische Darstellung der Raser-apparatur, wobei der Vereinfachung wegen die zur Detektion der Rasersignale notwendige aktive KO-Probe (Tektronix P6202) nicht eingezeichnet ist. Mit einem Speicheroszilloskop (Tektronix 7633) registrieren wir das selbstinduzierte Hochfrequenzfeld des Rasers. In Figur 2.4 ist ein typisches Rasersignal, das der Enveloppe der Hochfrequenzspannung entspricht, dargestellt. Der erste scharfe Puls, der auf diesem Bild abgeschnitten ist, kann Amplituden von über 100 V aufweisen.

Der Wert des Gütefaktors Q des Schwingkreises liegt für die meisten Messungen zwischen 60 und 120. Höhere Werte ($Q \sim 200$) können erreicht werden, wenn die Kapazität ausserhalb des Dewars zugunsten der Kapazität im Helium verkleinert wird. Werte über 200 rufen nach einer gänzlichen Neukonzeption des Schwingkreises. Zur Diskussion stehen Lösungen mit einer Teilauskopplung (induktiv oder kapazitiv) der Rasersignale oder eine impedanzmässig bessere Anpassung des Schwingkreises an die Messleitung.

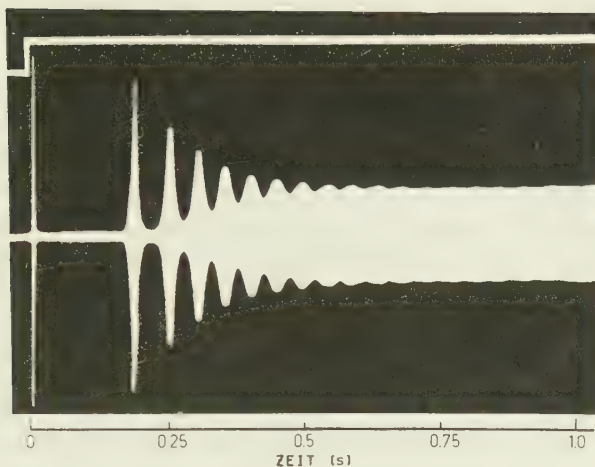


Fig.2.4: Oben: Spannung an Varicapdiode
Unten: Raser-signal nach Abstimmen
des Kreises.

Eine weitere wichtige Grösse für unsere Berechnungen ist der Füllfaktor des Schwingkreises. Dieser kann experimentell nur ungenau bestimmt werden. Aus dem Vergleich von berechneten Raserpulsen mit gemessenen Signalen kann der Wert dieses Parameters ermittelt werden. Das Resultat aus der, im Abschnitt 4.1.1. beschriebenen Anpassung von Theorie und Experiment, beträgt 0.57.

2.2. Rasergleichungen

Mit Raseraktivität meinen wir die spontan einsetzende, durch kollektive Ordnungsmechanismen erzwungene, kohärente Bewegung von Kernspins (^{27}Al), die zur Emission von Radiowellen führt. Den physikalischen Hintergrund bilden magnetische Dipolübergänge im Spinsystem zusammen mit dem selbstinduzierten Strahlungsfeld. Die makroskopische Beschreibung des Rasers geschieht anhand statistischer Mittelwerte für die Kernmagnetisierung und für die Feldstärke des magnetischen Strahlungsfeldes. Es sind die Ordnungsparameter, für die wir Bewegungsgleichungen benötigen.

2.2.1. Der 2-Niveau Raser

Im Rubin mit den raseraktiven ^{27}Al Kernen existieren infolge der Spinquantenzahl $I=5/2$ und einer nicht verschwindenden Quadrupolwechselwirkung fünf $\Delta m=\pm 1$ Resonanzübergänge. Dadurch wird im allgemeinsten Fall ein "Multi-Mode" Verhalten erwartet. Eine befriedigende Theorie für diesen allgemeinen Fall zu finden, dürfte jedoch schwierig sein. Einfacher werden die Verhältnisse, wenn zur Raseraktivität nur ein einziger $\Delta m=\pm 1$ NMR-Uebergang beiträgt. Der Rubinraser zeigt bei unseren experimentellen Parametern tatsächlich ein solches "Single-Mode" Verhalten. In diesem Fall kann das raseraktive System in guter Näherung als ein 2-Niveausystem angesehen werden, das in der Molekularfeld ("mean-field") Näherung durch klassische Bewegungsgleichungen vom Bloch-Typus beschrieben werden kann. Voraussetzung für den Erfolg dieser Beschreibung ist allerdings die Existenz einer einzigen Präzessionsfrequenz bzw. einer homogen verbreiterten Resonanz mit Lorentz'scher Linienform. Dies bedeutet schwache Spin-Spinwechselwirkungen, eine Bedingung die in Flüssigkeiten und Gasen infolge des "motional-narrowing" sehr oft erfüllt ist. In Festkörpern mit den starken Dipol-Dipolwechselwirkungen $\mathcal{H}_{II}$ und $\mathcal{H}_{SI}$ und oft inhomogen verbreiterten Linien ruft das Spinverhalten nach einer grundsätzlich verschiedenen Beschreibung. Ansätze zu einer befriedigenden Theorie stammen von Redfield /15/ und Provotorov /16/, doch eignen sich diese nur zur qualitativen Behandlung von quasistationärem Spinverhalten. Die Redfield'sche Hypothese über die Existenz einer Spintemperatur im rotierenden Feld dürfte beim Raser kaum Aussicht auf Erfolg haben. Vor allem dann nicht, wenn kurzfristige Raseraktivitäten sich im Zeitraum der Spin-Spinrelaxationszeit abspielen, wie wir sie bei Anregungen im kritischen Gebiet angetroffen haben.

Erste Experimente und ihre Analysen /1/ mit "Single-Mode" Verhalten des Rubinrasers haben jedoch gezeigt, dass das Bloch-Typ 2-Niveau Modell eine bemerkenswert gute Näherung darstellt. Wir legen es deshalb auch den weiteren Ausführungen dieser Arbeit zugrunde, da uns bis heute noch keine ausgearbeitete Alternative zur Verfügung steht.

Die Bloch-Gleichungen sind streng deterministische Bewegungsgleichungen, die nebst den Kopplungen an äussere Felder noch dissipative Relaxationsterme enthalten. Für das nicht-lineare Raserverhalten müssen stochastische Terme beigefügt werden, die die speziell im kritischen Gebiet einflussreichen Fluktuationen beschreiben. Ebenso muss ein Mikrowellenpumpterm und die dynamische Gleichung für das selbstinduzierte Raserfeld, das Reaktionsfeld, hinzugefügt werden. Für den ^{27}Al Kernspinraser ist ferner zu beachten, dass der wahre Kernspin $I=5/2$ beträgt, dagegen das 2-Niveau Modell einen Spin $I=1/2$ voraussetzt. Diesem Umstand kann mit einem fiktiven Spin- $1/2$ Formalismus [5] Rechnung getragen werden, wobei für die verschiedenen $\Delta m=\pm 1$ Uebergänge Spinfaktoren proportional zu den Matrixelementen $|\langle m|I^{\pm}|m+1\rangle|^2$ einzuführen sind, und die wahren Ordnungsparameter durch fiktive Variable ersetzt werden.

2.2.2. Herleitung der 2-Niveau Rasergleichungen

Wie vermerkt, gehen wir von den klassischen Bloch-Gleichungen für Spins im statischen Magnetfeld B_0 und der Resonanzfrequenz $\omega_0 = \gamma B_0$, die mit einem normal zu B_0 zirkular polarisierten Magnetfeld der Amplitude B_1 und der Frequenz ω bestrahlt werden, aus. Im üblichen, mit der Frequenz ω rotierenden (u,v,z) -Koordinatensystem lauten diese für die fiktiven Variablen M'_u, M'_v, M'_z, B'_1 :

$$\frac{dM'_u}{dt} = \Delta\omega M'_v - \frac{M'_u}{T_2} \quad (2.1a)$$

$$\frac{dM'_v}{dt} = \gamma B'_1 M'_z - \Delta\omega M'_u - \frac{M'_v}{T_2} \quad (2.1b)$$

$$\frac{dM'_z}{dt} = -\gamma B'_1 M'_v - \frac{M'_z - M_0}{T_1} \quad (2.1c)$$

Das Hochfrequenzfeld B'_1 setzt sich im allgemeinen aus dem selbst-induzierten Reaktionsfeld der Spins, einem möglicherweise von aus-

sen angelegten Feld und einem fluktuierenden Feld, das durch den Rauschstrom des Schwingkreises erzeugt wird, zusammen.

Wir beschränken uns zunächst auf den Fall des freien Rasers, wo das externe Feld Null ist. Um eine analytische Beziehung für das selbstinduzierte Reaktionsfeld anzugeben, betrachten wir die Gleichung eines Parallelschwingkreises, der die Rolle eines Laserhohlraums übernimmt, und an dem die Raseraktivität gemessen wird.

Im Schwingkreis der Güte $Q = \frac{\omega L}{R}$ werde in der Spule eine Spannung V^i induziert. Dann kann die Differential-Integralgleichung für den Strom in folgender Form angeschrieben werden:

$$V^i - L \frac{dI}{dt} = IR + \frac{\int I dt}{C} \quad . \quad (2.2)$$

In unserem Fall ist V^i die durch die umklappenden Spins induzierte Spannung. Wenn wir die zeitliche Änderung des Nutationswinkels vernachlässigen, erhalten wir im Laborsystem folgenden Zusammenhang zwischen dieser Spannung und der Quermagnetisierung M'_V

$$V^i = -\frac{d\Phi}{dt} = -\mu_0 \eta N F \omega M'_V \cos \omega t \quad , \quad (2.3)$$

wo N die Anzahl Windungen und F die Querschnittfläche der Spule sind.

Die zeitliche Ableitung der Gleichung (2.2) führt zu der Differentialgleichung für den Strom

$$\dot{V}^i = L\ddot{I} + \dot{I}R + \frac{I}{C} \quad . \quad (2.4)$$

Die homogene Lösung davon lautet

$$I = I_0 e^{-\frac{R}{2L}t} \cos(\omega t + \delta) \quad , \quad (2.5)$$

mit

$$\omega = \sqrt{\omega_c^2 - \frac{R^2}{4L^2}} \quad , \quad (2.6)$$

und

$$\omega_c = \sqrt{\frac{1}{LC}} \quad . \quad (2.7)$$

Da die Abklingzeit des Schwingkreises $\tau_c = \frac{2L}{R} = \frac{2Q}{\omega}$ kurz ist gegenüber den Zeiten, in denen sich die Magnetisierung merklich ändert, können wir uns auf die partikuläre stationäre Lösung der Gleichung (2.4) beschränken. Für den Fall exakter Resonanz ($\omega = \omega_c$) erhalten wir im rotierenden Koordinatensystem für den Strom die Lösung

$$I(t) = -\mu_o \eta \frac{NF\omega}{R} M_v^+ \quad . \quad (2.8)$$

Nebst diesem selbstinduzierten Feld spielen die Fluktuationen des Feldes eine grosse Rolle. In dieser Arbeit begnügen wir uns mit einer groben Näherung /17/. Dabei nehmen wir an, dass das thermische Rauschen im Stromkreis eine dominante Rolle spielt. Für das effektive Rauschfeld setzen wir wieder eine deterministische Gleichung an und addieren dieses Feld zum selbstinduzierten Reaktionsfeld.

Der zeitliche Mittelwert des quadratischen Rauschstroms beträgt

$$\overline{I^2} = \frac{4}{R} \frac{kT}{\Delta\nu} \Delta\nu \quad , \quad (2.10)$$

wo T die Temperatur des Kreises und $\Delta\nu$ die Bandbreite sind.

Ersetzen wir R durch den Gütefaktor Q, erhalten wir für die Wurzel des quadratischen Rauschfeldes

$$B_n = \sqrt{B_n^2} = \sqrt{\frac{\mu_o k T \Delta\nu Q}{\ell\nu 2\pi^2 r^2}} \quad . \quad (2.11)$$

Die Beschreibung des ^{27}Al Spinsystems mit einem effektiven Spin $I > 1/2$ kann durch die folgende Transformation auf fiktive Spin- $1/2$ Variablen zurückgeführt werden:

$$B_1 = \frac{1}{\Gamma_m} B_1' \quad (2.12a)$$

$$M_v = \Gamma_m M'_v \quad (2.12b)$$

$$M_u = \Gamma_m M'_u \quad (2.12c)$$

$$M_z = M'_z \quad (2.12d)$$

Die Spinfaktoren Γ_m sind zu den Matricelementen des Drehimpulsoperators $|\langle m | I^{\pm}, m+1 \rangle|^2$ proportional. Für $I=5/2$ sind diese Faktoren in Tabelle 2.1 zusammengestellt.

Uebergang	$-\frac{5}{2} \leftrightarrow -\frac{3}{2}$	$-\frac{3}{2} \leftrightarrow -\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2} \leftrightarrow \frac{1}{2}$	$\frac{1}{2} \leftrightarrow \frac{3}{2}$	$\frac{3}{2} \leftrightarrow \frac{5}{2}$
Spinfaktor Γ_m	$\sqrt{5}$	$\sqrt{8}$	$\sqrt{9}$	$\sqrt{8}$	$\sqrt{5}$

Tab.2.1: Spinfaktoren für die 5 $\Delta m = \pm 1$ Uebergänge in Rubin.

Entsprechend diesen Transformationen sind wir nun in der Lage, die dynamischen Gleichungen für die wahren Ordnungsparameter anzugeben. Für den rein absorptiven Raserzustand ($\Delta\omega=0$) des Zentralübergangs $-1/2 \leftrightarrow 1/2$ lauten diese im rotierenden System:

$$B_1 = -\frac{1}{2} \mu_0 \eta Q M_v + B_n \quad (2.13a)$$

$$\frac{dM_v}{dt} = \gamma M_z B_1 - \frac{M_v}{T_2} \quad (2.13b)$$

$$\frac{dM_z}{dt} = -\gamma M_v B_1 - \frac{M_z - M_0}{T_1} \quad (2.13c)$$

Noch fehlt der Mikrowellenpumpterms. Um den physikalischen Hintergrund dieser Grösse besser zu verstehen, wollen wir die Kopplungen des ^{27}Al Kernspinsystems ($\mathcal{H}_{\text{Al}}$) an andere Systeme anhand eines Wärmereservoirmodells diskutieren. Aus früheren Arbeiten über ein

Modell gekoppelter Wärmebäder in Rubin /2,18/ ist bekannt, dass zwischen $\{\mathcal{H}_{Al}\}$ und dem Dipol-Dipolwechselwirkungssystem, dem sogenannten SS-System $\{\mathcal{H}_{SS}\}$ der Cr^{3+} Ionen, eine starke Kopplung existiert. Der Kontakt von $\{\mathcal{H}_{Al}\}$ an das Gitter ist bei Gittertemperaturen von einigen Kelvin völlig vernachlässigbar gegenüber der Kopplung an $\{\mathcal{H}_{SS}\}$. Damit fällt der Term mit der Spin-Gitter-relaxationszeit T_1 in der Gleichung (2.13c) weg.

Im Fall des Rasers, wo nur das "Single-Mode" Verhalten von uns untersucht wurde, ist zu berücksichtigen, dass nur Spins von einem $\Delta m = \pm 1$ Uebergang zur kohärenten Strahlung beitragen. Diesen raseraktiven Spins ordnen wir ein Wärmereservoir $\{\mathcal{H}_{Al}^r\}$ zu. Die Spins der 4 übrigen inkohärenten ($\Delta m = \pm 1$) Uebergänge fassen wir in ein System der raserinaktiven Spins $\{\mathcal{H}_{Al}^o\}$ zusammen. Beide ^{27}Al Subsysteme sind an $\{\mathcal{H}_{SS}\}$ gekoppelt. Dies bedeutet, dass gespeicherte Energie von $\{\mathcal{H}_{Al}^o\}$ über $\{\mathcal{H}_{SS}\}$ an das raseraktive System $\{\mathcal{H}_{Al}^r\}$ fließen kann. In Figur 2.5 sind die für den Raser wichtigen Wärmereservoirs in Rubin mit den relevanten Kopplungen schematisch aufgezeichnet.

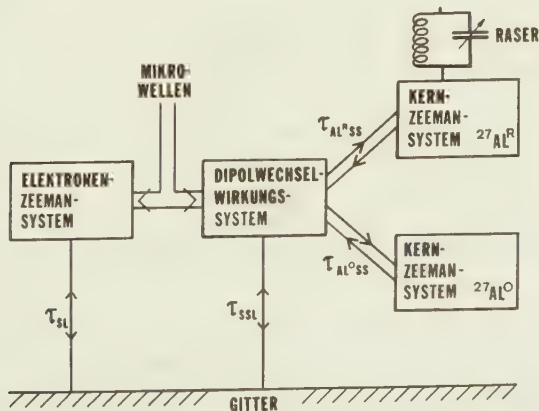


Fig.2.5: Wärmereservoir für den ^{27}Al Kernspin-raser in Rubin.

Mit diesem Reservoirmodell und den bereits diskutierten Raser-Blochgleichungen ist es möglich, das zeitliche Verhalten des

Rasers qualitativ und quantitativ zu beschreiben. Die Verbindung der Raser-Gleichungen mit obigem Modell führt auf folgendes Differentialgleichungssystem:

$$\frac{dM_v}{dt} = \left(-\frac{9}{2} \mu_O n Q \gamma M_v + 9 \gamma B_n \right) M_z - \frac{M_v}{T_2} \quad (a)$$

$$\frac{dM_z}{dt} = \frac{1}{2} \mu_O n Q \gamma M_v^2 - \gamma B_n M_v - \frac{AC}{6} \frac{1}{\tau_{AlSS}^r} (\beta_{Al}^r - \beta_{SS}) \quad (b)$$

$$\beta_{Al}^r = 6 M_z / (AC) \quad (c)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\beta_{SS}}{dt} = & - \frac{c_{Al}^o}{c_{SS}} \frac{1}{\tau_{Al}^o} (\beta_{SS} - \beta_{Al}^o) - \frac{c_{Al}^r}{c_{SS}} \frac{1}{\tau_{Al}^r} (\beta_{SS} - \beta_{Al}^r) \\ & - \frac{1}{\tau_{SSL}} (\beta_{SS} - \beta_{SL}) + \pi (\gamma_s B_1^{MW})^2 g(\omega_s - \omega_m) \times \end{aligned} \quad (2.14)$$

$$\frac{\omega_s - \omega_m}{\delta \omega^2} (\omega_s \beta_s - (\omega_s - \omega_m) \beta_{SS}) \quad (d)$$

$$\frac{d\beta_{Al}^o}{dt} = \frac{1}{\tau_{AlSS}^o} (\beta_{Al}^o - \beta_{SS}) \quad (e)$$

$$\beta_s = \beta_L, \quad A = \frac{\hbar \omega}{k_B}, \quad C = \frac{N_O \gamma \hbar}{2}.$$

Die ersten beiden Gleichungen sind die Bloch-Gleichungen für den Raser mit dem expliziten Ausdruck für die Kopplung des raseraktiven Systems an das SS-System. Dem Zusammenhang zwischen Magnetisierung und inverser Spintemperatur wird durch eine Hochtemperaturnäherung (Gl. 2.14c) Rechnung getragen. Die Gleichung (d) enthält alle Kopplungen des SS-Systems und die Pumpwirkung des Mikrowellenfeldes B_1^{MW} . Die letzte Gleichung beschreibt die Kopplung der raserinaktiven Spins an $\{\mathcal{H}_{SS}\}$. Eine detaillierte Beschreibung

dieser Terme findet sich in Ref./18/. Allerdings müssen wir hier bemerken, dass das Gleichungssystem dieser Referenz gewisse Abweichungen im Vergleich zum System (2.14) aufweist. So fehlen die Terme des Rauschfeldes B_n in der M_v - und M_z -Gleichung. An deren Stelle wird in der M_v Gleichung im Term mit T_2 eine Magnetisierung M_{ve} angefügt. Die Grösse M_{ve} entspricht dabei der stationären Lösung von (2.13b) wenn B_1 einem noch zu diskutierenden willkürlichen Rauschfeld gleichgesetzt wird. Numerische Lösungen beider Gleichungssysteme führen auf Resultate, die sich kaum unterscheiden. Aus physikalischen Gründen ist es aber plausibler, die obige Formulierung mit dem Rauschfeld B_n zu wählen.

Die vollständigen Rasergleichungen (2.14) sind unübersichtlich, doch lassen sie sich merklich vereinfachen, wenn das spezielle Verhalten in ausgewählten Zeitbereichen diskutiert werden soll. Dabei gilt es, die in Tabelle 2.2 zusammengestellten Zeitkonstanten genauer zu betrachten, die eine Abgrenzung der Zeitbereiche: kurz-, mittel- und langfristig ermöglichen. In den folgenden Kapiteln wird von dieser Charakterisierung ausgiebig Gebrauch gemacht.

$\tau_c = 1 \times 10^{-6} \text{ s}$	Abklingzeit des Schwingkreises
$T_2 = 30 \times 10^{-6} \text{ s}$	Spin-Spin Relaxationszeit
$\tau_D \approx 2 \times 10^{-3} \text{ s}$	Verzögerungszeit des 1. Pulses
$\tau_{AlSS}^r \approx 0.2 \text{ s}$	Kopplungszeit zwischen $\{H_{Al}^r\}$ und $\{H_{SS}\}$
$\tau_{AlSS}^o \approx 0.8 \text{ s}$	Kopplungszeit zwischen $\{H_{Al}^o\}$ und $\{H_{SS}\}$
$\tau_{Pol} \approx 60 \text{ s}$	Polarisationszeit des ^{27}Al Spinsystems

Tab.2.2: Zusammenstellung der Zeitkonstanten der Rasergleichungen.

3. STATIONÄRES VERHALTEN

Wir wollen hier ein vereinfachtes Gleichungssystem vorstellen, mit dem es möglich ist, das Verhalten des superradianten Spinsystems in der Nähe stationärer Zustände (Langzeitverhalten) zu beschreiben. Die stationären Lösungen werden wir unter dem Gesichtspunkt ihrer Stabilität genauer untersuchen.

In der Nähe des kritischen Punktes können die inversen Spintemperaturen des raserinaktiven Systems (β_{Al}^0) und des SS-Systems (β_{SS}) einander gleichgesetzt werden. Wir dürfen diese beiden Systeme folglich zu einem neuen Reservoir zusammenfassen. Schliessen wir noch die Mikrowellenpumpe und die Relaxationseffekte mit ein, erhalten wir damit ein effektives Pumpsystem. Dieses ist ebenfalls durch eine (inverse) Spintemperatur charakterisiert. Wir wollen das System nicht durch diese Spintemperatur sondern durch eine Magnetisierung M_e beschreiben. Die Beziehung zwischen M_e und der entsprechenden inversen Spintemperatur ist in der Hochtemperaturnäherung durch die Funktion (2.14c) gegeben. In Figur 3.1 ist dieses vereinfachte Reservoirmodell aufgezeichnet.



Fig.3.1: Vereinfachtes Reservoirmodell für den Raser in der Nähe stationärer Zustände.

Die Kopplungszeit T_e zwischen den beiden Reservoirs entspricht der, in den Gleichungen (2.14) verwendeten Zeitkonstanten τ_{AlSS}^r .

3.1. Stationäre Lösungen und Raserpotential

Unter der Annahme, dass die Pumpmagnetisierung M_e konstant sei, und unter Vernachlässigung des Rauschfeldes B_n erhalten wir das

vereinfachte Raser-Gleichungssystem für die beiden Komponenten der Magnetisierung

$$\frac{dM_v}{dt} = -\frac{9}{2}\mu_0 n Q \gamma M_z M_v - \frac{M_v}{T_2} \quad (3.1a)$$

$$\frac{dM_z}{dt} = \frac{1}{2}\mu_0 n Q \gamma M_v^2 - \frac{M_z - M_e}{T_e} \quad (3.1b)$$

Gleichzeitig führen wir die, in der Einleitung definierte, kritische Magnetisierung M_k ein. Unter Berücksichtigung des Spins $I=5/2$ für ^{27}Al gilt für den Zentralübergang $-1/2 \leftrightarrow 1/2$:

$$M_k = \frac{2}{9\mu_0 n Q \gamma T_2} \quad (3.2)$$

Der Pumpparameter bleibt unverändert

$$p = \frac{M_e}{M_k} \quad (3.3)$$

Mögliche stationäre Lösungen des Gleichungssystems (3.1) sind: $M_v^{\text{st}}=0$ und $M_z^{\text{st}}=M_e$. Die Lösung $M_z^{\text{st}}=M_e$ ist stabil. Für die Analyse der Stabilität der M_v Lösung machen wir den Ansatz

$$M_v^{\text{st}} = M_{v0} e^{\Omega t} \quad (3.4)$$

Unter Verwendung der Beziehungen (3.2) und (3.3) erhalten wir

$$\Omega = \frac{1}{T_2} (-1-p) \quad (3.5)$$

Damit wird $M_v^{\text{st}}=0$ eine stabile Lösung für $p > -1$. Im Fall $p < -1$ ist sie instabil. Der Ordnungsparameter M_v nimmt in diesem Fall den stabilen Wert $M_v^{\text{st}} \neq 0$ an. Um die explizite Lösung zu bestimmen, betrachten wir das Gleichungssystem (3.1) und setzen $M_z \approx M_e$. Demzufolge kann die zeitliche Ableitung von M_z im Vergleich zum Term mit T_e vernachlässigt werden. Wird M_z nun eliminiert, erhalten wir eine Differentialgleichung für M_v :

$$\dot{M}_V = -\alpha M_V - \varepsilon M_V^3 \quad , \quad (3.6)$$

$$\text{mit} \quad \alpha = \frac{1}{T_2} (-1-p) \quad (3.7)$$

$$\text{und} \quad \varepsilon = \frac{9}{4} \mu_0^2 \eta^2 \gamma^2 Q^2 T_e \quad . \quad (3.8)$$

Die nicht triviale stationäre Lösung dieser Gleichung lautet:

$$M_V^{\text{st}} = \pm \sqrt{\frac{\alpha}{\varepsilon}}$$

oder durch den Pumpparameter ausgedrückt

$$M_V^{\text{st}} = \frac{2}{3\mu_0 \eta \gamma Q \sqrt{T_e T_2}} \sqrt{-1-p} \quad . \quad (3.10)$$

Die entsprechende Lösung für die z-Komponente lautet:

$$M_z^{\text{st}} = M_e \quad . \quad (3.11)$$

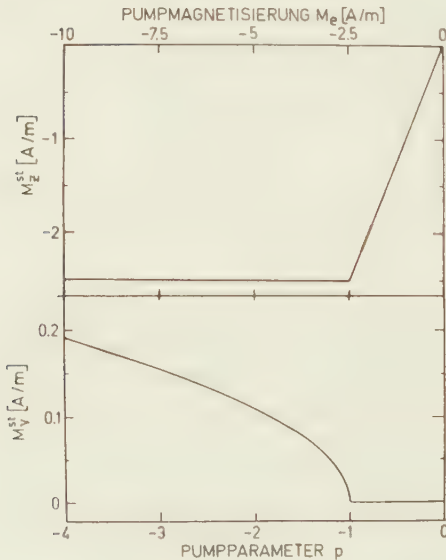


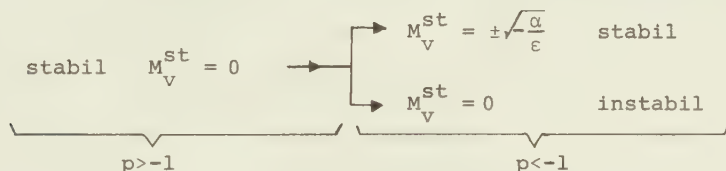
Fig.3.2: Verlauf der stabilen stationären Lösungen von M_V und M_Z in Funktion von p .

$$(M_k = -2.5 \text{ A/m}, \eta Q = 33)$$

In Figur 3.2 sind die stabilen stationären Lösungen von M_V und M_Z in Funktion des Pumpparameters p dargestellt.

Für $M_e > M_k$ ist $p > -1$. An der Schwelle ($p = -1$) erreicht das System einen kritischen Punkt. Der Uebergang des Ordnungsparameters von $M_V^{st} = 0$ zum Wert $M_V^{st} = \sqrt{\frac{\alpha}{\epsilon}}$ kann als ein Unordnungs- Ordnungsübergang betrachtet werden, der grosse Aehnlichkeit mit Phasenübergängen 2.Ordnung bei thermodynamischem Gleichgewicht aufweist. Der kritische Exponent unseres Ordnungsparameters beträgt gemäss Gleichung (3.9) $1/2$.

Beim Punkt $p = -1$ spalten sich die stationären Lösungen für den Ordnungsparameter auf. Dies kann folgendermassen schematisch skizziert werden:



Diese Aufspaltung der Lösungen am kritischen Punkt wird allgemein als Bifurkation bezeichnet, wobei die Stabilität der Gleichgewichtslagen ausgetauscht wird /4/. Sie ist ein typisches Merkmal eines Phasenübergangs 2.Ordnung.

Die experimentelle Bestätigung diese Phasenübergangs bereitet prinzipielle Schwierigkeiten, da der Pumpparameter p absolut bestimmt werden muss. Im strahlenden Zustand ist dies auf direkte Weise nicht möglich. Deshalb schlagen wir einen indirekten Weg ein: dem statischen Magnetfeld B_0 wird ein schwacher Feldgradient überlagert, der eine messbare inhomogene Linienverbreiterung bewirkt. Kleine Inhomogenitäten werden als Verkürzung von T_2 gedeutet und entsprechend geeicht. Damit kann M_k nach Gleichung (3.2) berechnet und p (bei konstanter Pumpmagnetisierung) kontrolliert variiert werden. In Figur 3.3 ist die Amplitude des stationären Rasersignals, die proportional zu M_V ist, gemäss

$$V = \mu_0 n Q N F \omega M_V \quad , \quad (3.12)$$

in Funktion des experimentellen Pumpparameters p aufgetragen.

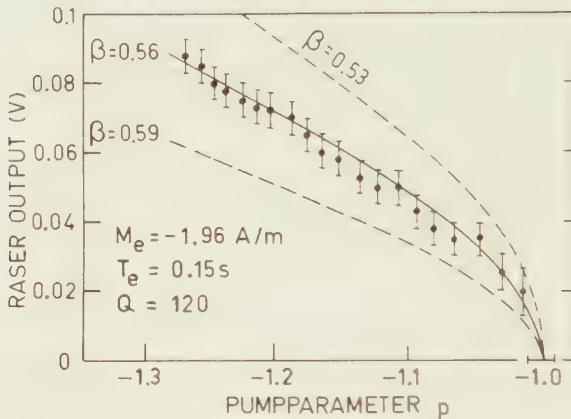


Fig.3.3: Stationäre Raseramplitude in Funktion des Pumpparameters p .

Die Anpassung der Messwerte ergibt für den kritischen Exponenten den Wert 0.56. Die Diskrepanz zwischen experimentell bestimmten Exponenten und dem theoretischen Wert ($1/2$) kann verschiedene Ursachen haben. Erstens können inhomogene Anteile zur Linienformfunktion dafür verantwortlich sein. Neuere Untersuchungen an einem CaF_2 -Raser zeigen eindeutig, dass inhomogen verbreiterte NMR-Übergänge zu Rasersignalen führen, die sich nicht mit unseren dynamischen Gleichungen beschreiben lassen [19]. Die Wirkung der Inhomogenität auf das kritische Verhalten ist noch ungeklärt. Zweitens ist die Annahme einer konstanten Pumpmagnetisierung M_e (bei konstanter Mikrowellenleistung) experimentell nicht überprüfbar. Drittens spielen die Fluktuationen in der Umgebung des kritischen Punktes eine nicht zu vernachlässigende Rolle und ergeben Abweichungen vom Landau-Verhalten. Aber auch hier fehlt eine quantitative Behandlung dieses Effekts.

Die Analogie des Unordnungs- Ordnungsübergangs des Rasers mit Phasenübergängen 2.Ordnung bei thermischem Gleichgewicht ist trotzdem offensichtlich /20/. Sie kann mit der Einführung eines Raserpotentials noch verdeutlicht werden.

Wir definieren als Raserpotential

$$\phi = \frac{\alpha}{2} M_V^2 + \frac{\varepsilon}{4} M_V^4 \quad (3.13)$$

und erhalten an Stelle von (3.6) die neue Bewegungsgleichung

$$\dot{M}_V = - \frac{\partial \phi}{\partial M_V} \quad (3.14)$$

Die Form des Potentials hängt vom Vorzeichen des Koeffizienten α bzw. vom Wert des Pumpparameters p ab. In Figur 3.4 ist das Raserpotential für die beiden Fälle $\alpha > 0$ ($p > -1$) und $\alpha < 0$ ($p < -1$) aufgezichnet.

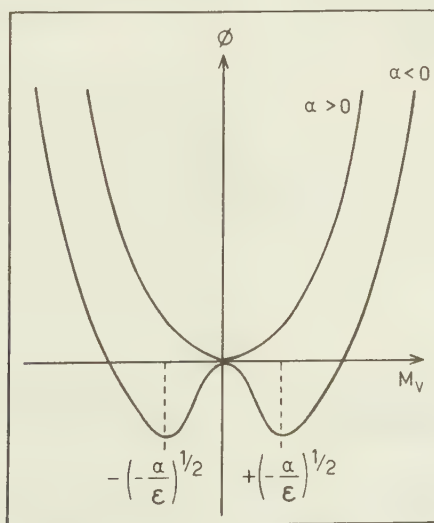


Fig.3.4: Raserpotential für $\alpha > 0$ und $\alpha < 0$.

Die Potentialmulden entsprechen den stabilen stationären Lösungen der Bewegungsgleichung (3.6) oder (3.14). Das Raserpotential ϕ entspricht der freien Energie F (eines Systems im thermischen Gleichgewicht). Aus den Ableitungen von ϕ erhalten wir an Stelle der Entropie die 'Raseraktivität S ' und an Stelle der spezifischen Wärme die 'spezifische Raseraktivität c '. Die Raseraktivität ist demnach

$$S = -\frac{\partial \phi}{\partial M_e} \quad . \quad (3.15)$$

Setzen wir im ungeordneten Zustand ($\alpha > 0$) $S=0$, dann gilt für den geordneten Zustand

$$S = \frac{1}{2T_e} (M_e - M_k) \quad . \quad (3.16)$$

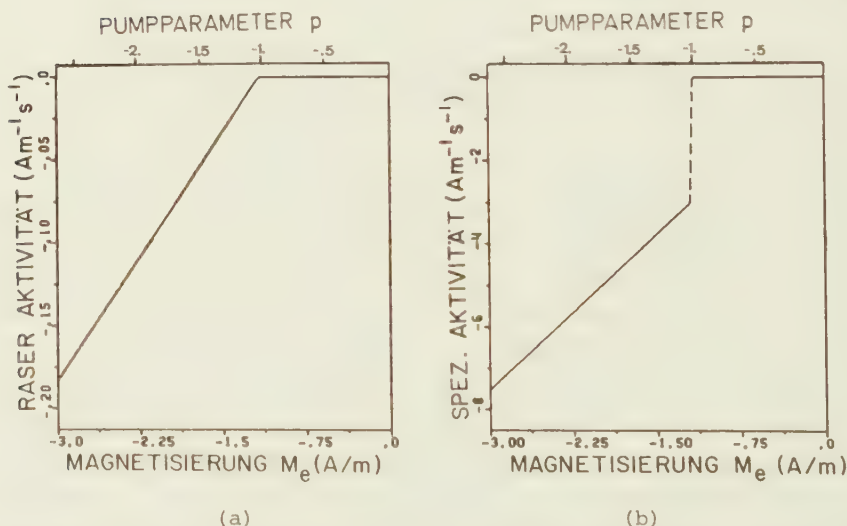


Fig.3.5: Raseraktivität (a) und spezifische Raseraktivität (b) in Funktion der Pumpmagnetisierung M_e .

Die spezifische Raseraktivität ist

$$c = - M_e \frac{\partial^2 \Phi}{\partial M_e^2} \quad . \quad (3.17)$$

Aus (3.16) folgt

$$c = 0 \quad : \quad \alpha > 0, (p > -1) \quad (a)$$

$$c = \frac{M_e}{2T_e} \quad : \quad \alpha < 0, (p < -1) \quad . \quad (b)$$

Die erste Ableitung des Potentials ist am kritischen Punkt stetig, wogegen die 2.Ableitung (die spezifische Raseraktivität) einen Sprung macht. In Figur 3.5 ist der Verlauf dieser beiden Grössen in Funktion der Pumpmagnetisierung M_e dargestellt.

Der diskontinuierliche Verlauf der 2.Ableitung des Potentials unterstreicht den Befund, dass dieser Unordnungs- Ordnungsübergang einen Phasenübergang 2.Ordnung darstellt.

3.2. Unterkritisches Verhalten

Wir betrachten die Bewegungsgleichung (3.1a) für die Querkomponente M_v in der Umgebung des kritischen Punktes für $\alpha > 0$ bzw. $-1 < p < 0$ und setzen voraus, dass M_z konstant sei. Die Bewegungsgleichung, ausgedrückt durch den Pumpparameter, lautet:

$$\frac{dM_v}{dt} = \frac{M_v}{T_2} (1+p) \quad . \quad (3.19)$$

Daraus erhalten wir die effektive Relaxationszeit T_{2eff} mit

$$\frac{1}{T_{2eff}} = \frac{1}{T_2} (1+p) \quad . \quad (3.20)$$

Diese effektive transversale Relaxationszeit bestimmt die Zerfallskonstante eines konventionellen freien Induktionssignals (FID). Für $-1 < p < 0$ kommt es zur Verlängerung der Zerfallszeit wie aus Figur 3.6 hervorgeht.

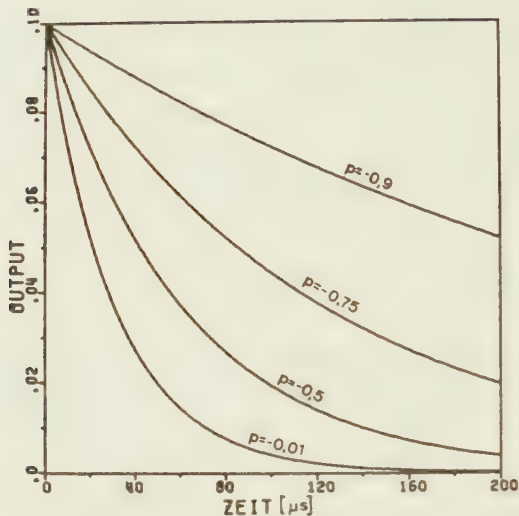


Fig.3.6: Freier Induktionszerfall für verschiedene Pumpparameter mit $-1 < p < 0$.

Der umgekehrte Effekt, eine Verkürzung dieser Zeitkonstanten ($T_{2\text{eff}} < T_2$) finden wir bei positiver Spintemperatur dh. $0 < p < 8$. Beide Effekte sind die Folge der Wechselwirkung der Spins mit dem eigenen Strahlungsfeld (Reaktionsfeld) und sind bei extrem schmalen NMR-Linien in Flüssigkeiten bereits früher beobachtet und interpretiert worden /21-24/.

Da die Linienbreiten der NMR-Absorptionssignale direkt proportional zur reziproken Relaxationszeit $T_{2\text{eff}}$ sind, ist es möglich, diesen Effekt mit einer Linienbreitenmessung nachzuweisen. Dazu beobachten wir mit einem Q-Meter und konventioneller NMR-Technik die Absorptionssignale der fünf aufgespaltenen Linien von ^{27}Al mit $\Delta m = 1$. Bei konstantem Magnetfeld messen wir die Signalamplituden in Funktion der eingestrahlten Frequenz, wobei wir den Frequenzbereich so wählen, dass alle fünf Linien innerhalb dieses Bereichs liegen. Variieren wir noch die Pumpmagnetisierung bzw. die Spintemperatur und tragen die Signalkurven in einer Zeichnung perspektivisch auf, können wir die Linienverschmälern

und das damit verbundene Anwachsen der Signalintensitäten /25/ deutlich herauslesen. In Figur 3.7 sind gemessene Signalkurven (a) und berechnete Signalformen (b) nebeneinander dargestellt.

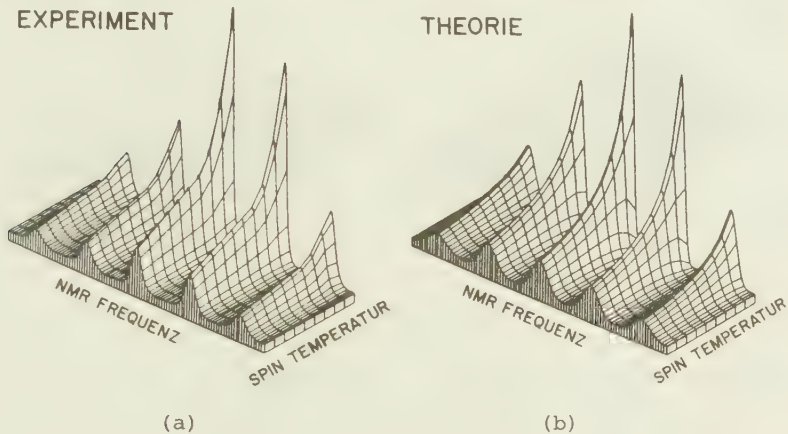


Fig.3.7: Gemessene (a) und berechnete (b) Linienverschmälerung ("critical narrowing") der 5^{u} Al Uebergänge mit $\Delta m = \pm 1$ in Funktion der Spintemperatur.

Dabei ist zu berücksichtigen, dass zwei Effekte zur Signalüberhöhung beitragen. Der dominante Effekt ist die beschriebene Wechselwirkung der Spins mit dem Reaktionsfeld. Der zweite Beitrag ist die Folge der Temperaturabhängigkeit der Besetzungszahlen. Die Amplitude der Absorptionssignale ist proportional zur Uebergangswahrscheinlichkeit und zum Besetzungszahlunterschied der beteiligten Energieniveaus. Im Bereich von betragsmässig kleinen Temperaturen, dh. bei Spintemperaturen von einigen mK äussert sich dieser Effekt im unterschiedlichen Anwachsen der Amplituden von Signalen mit gleicher Uebergangswahrscheinlichkeit aber verschiedenen magnetischen Spinquantenzahlen /14/. Figur 3.8a zeigt deutlich das nichtlineare Anwachsen der fünf Signalamplituden in Funktion der Spintemperatur wenn das Reaktionsfeld vernachlässigt wird. Figur 3.8b stellt dieselben Signale mit Berücksichtigung des Reaktionsfeldes für $p \rightarrow -1$ dar.

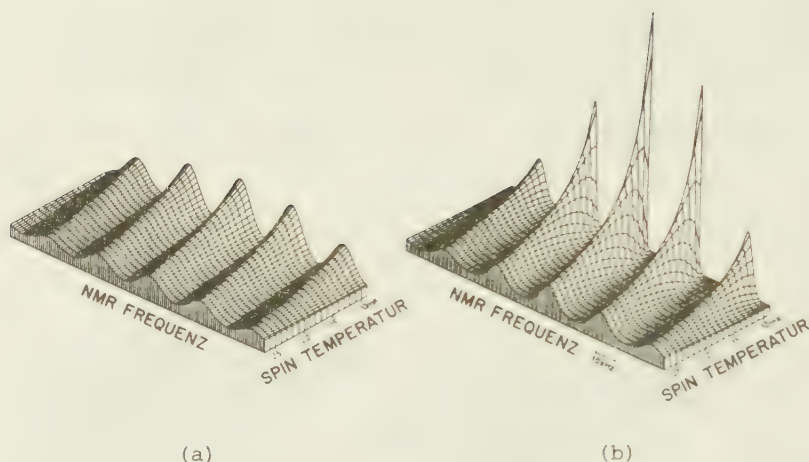


Fig.3.8: Berechnete Signalintensitäten der 5 ^{27}Al $\Delta m=\pm 1$ Uebergänge in Funktion der Spintemperatur:
 (a) bei Vernachlässigung des Reaktionsfeldes
 (b) mit Reaktionsfeld.

3.3. Stabilität und Parameterabhängigkeit der Raserfrequenz

Das Frequenzverhalten eines Rasers unterscheidet sich in wesentlichen Punkten von demjenigen eines Lasers. Beim Laser besteht der Hohlraum im allgemeinen aus zwei Spiegeln. Der Q-Wert kann dabei sehr grosse (10^8) Werte erreichen. Der sogenannte Q-Wert des angeregten Atomsystems ist üblicherweise kleiner als das Q des Hohlraums. Dies bedeutet, dass die Laserfrequenz durch den Abstand der beiden Spiegel bestimmt ist. Beim Raser sind die Verhältnisse gerade umgekehrt. Der Gütefaktor unseres Resonators (Schwingkreis) beträgt ca. 10^2 und ist damit kleiner als der Q-Wert des NMR-Systems ($\sim 10^4$). Die Frequenz des Rasers wird folglich nicht durch den Schwingkreis, sondern durch die Resonanzfrequenz des entsprechenden Raserübergangs bestimmt. Innerhalb gewisser Grenzen kann die Raserfrequenz durch eine systematische Verstimmung der Schwingkreisresonanzfrequenz verändert werden. Für diesen Effekt, der als Ziehen oder "Pulling" bezeichnet wird, existiert eine analytische

Näherung. Das Verhältnis der Frequenzverschiebung bei verstimmtem Schwingkreis ist nach /5,26/

$$\frac{\omega - \omega_0}{\omega - \omega_c} = - \frac{2 Q}{T_2 \omega_c} \quad , \quad (3.21)$$

wo ω_c die Resonanzfrequenz des Schwingkreises, ω_0 die Larmorfrequenz des Raserübergangs und ω die Raserfrequenz sind.

Der Vergleich des experimentell ermittelten Wertes mit dem theoretischen Wert, wie er aus Gleichung (3.21) berechnet werden kann, ist in Tabelle 3.1 dargestellt.

	EXPERIMENT	THEORIE
$\frac{\omega - \omega_0}{\omega - \omega_c}$	$(5.2 \pm 0.6) \times 10^{-2}$	$(6.6 \pm 0.2) \times 10^{-2}$

Tab.3.1: Gemessenes und berechnetes Verhältnis der Frequenzverschiebung beim Ziehen ("Pulling") des Rasers.

In Figur 3.9 sind die Messpunkte der Raserfrequenz als Funktion der eingestellten Kreisfrequenz dargestellt. Die eingezeichnete Gerade entspricht dem theoretischen Wert der Verstimmung.

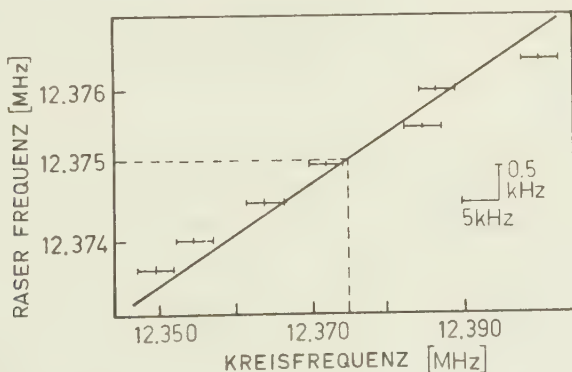


Fig.3.9: Gemessene Raserfrequenz in Abhängigkeit der Schwingkreisresonanzfrequenz. Die Gerade entspricht dem theoretischen Wert.

Beim Ziehen der Raserfrequenz bleibt die Amplitude der Raseroszillationen nicht konstant. Sie nimmt mit zunehmender Verstimmung ab. Bei einer kritischen Verstimmung bricht die Raserschwingung zusammen. In Figur 3.10 stellt die obere Kurve die Amplitude (in willkürlichen Einheiten) der stationären Raserschwingung in Funktion der 'gezogenen' Raserfrequenz dar. Als Vergleich dazu ist in der untern Kurve das differenzierte NMR-Signal des betreffenden $\Delta m = \pm 1$ Uebergangs im gleichen Frequenzmassstab aufgezeichnet.

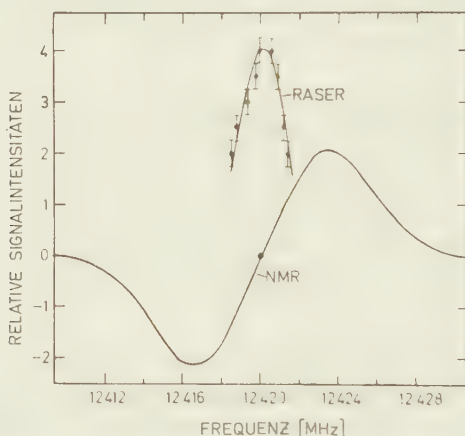


Fig.3.10: Raseramplitude als Funktion der Raserfrequenz beim Pulling (oben) und differenziertes NMR-Signal (unten).

Die beiden Messungen von Figur 3.10 sind kurz nacheinander durchgeführt worden, was uns erlaubt, die Frequenzmitten der beiden Signale miteinander zu vergleichen. Wir schliessen daraus, dass sie innerhalb unserer, durch den Magneten bestimmten Auflösung von 100 Hz, übereinstimmen. Dieses Resultat ist für unsere rasertheoretischen Betrachtungen von grosser Bedeutung. Unsere bisherige Annahme, dass der Raser ein rein absorptives Verhalten zeige, wird dadurch bekräftigt. Das superradiante System kann folglich mit einer zweidimensionalen Theorie (M_V und M_Z) beschrieben werden.

Messungen über die Stabilität der Raserfrequenz zeigen, dass die Kurzzeitstabilität (einige Minuten) mit ± 5 Hz bzw. 4×10^{-7} angegeben werden kann. Die Stabilität über längere Zeitbereiche (Stunden) ist besser als die Stabilität des Magnetfeldes (10^{-5}).

4. DYNAMIK DES RUBINRASERS

In diesem Kapitel diskutieren wir typische Einschwingvorgänge des Rubinrasers. Dabei betrachten wir die zeitliche Entwicklung der Selbstoszillationen eines stark invertierten Spinsystems, nachdem der Schwingkreis sprunghaft auf die NMR-Frequenz abgestimmt worden ist, ein Procedere das im Abschnitt 2.1.2.2. beschrieben ist. Bei einem Pumpparameter $p < -1$ geht das Spinsystem von einem nicht strahlenden ($X=0, Y=0$) in einen strahlenden stationären Zustand mit $X \neq 0, Y=0$ über. Wie das Signal in Figur 2.4 zeigt, können wir drei zeitliche Bereiche unterscheiden :

- a) den Kurzzeitbereich mit einem, um die Verzögerungszeit τ_D verschobenen Riesenpuls.
- b) den mittelfristigen Bereich, wo nach einer charakteristischen Totzeit gedämpfte Relaxationsoszillationen auftreten.
- c) den Langzeitbereich mit dem Uebergang in den stationären Schwingungszustand.

4.1. Einschwingvorgang des schwach gepumpten Rasers

Bei einem schwach gepumpten Raser ist der Pumpparameter in der Nähe des kritischen Werts $p = -1$. Für den Rubinraser mit einer typischen Pumpleistung $M_0 \approx 2.8 \text{ A/m}$ und einem niedrigen Q-Wert ($Q \approx 60$) ist $p \approx -1.1$. Es kommt dabei zu einem "Single-Mode" Verhalten, bei dem nur ein einziger $\Delta m = \pm 1$ Uebergang zur kollektiven Raseroszillation beiträgt.

4.1.1. Kurzzeitverhalten

Eine der charakteristischen Zeitkonstanten des Riesenpulses ist die Verzögerungszeit τ_D , nach welcher dieser Puls erscheint. Diese Zeit beträgt gemäss Tabelle 2.2 einige Millisekunden. Dies recht-

fertigt alle Terme der Rasergleichungen (2.14) mit Zeitkonstanten grösser als τ_D zu vernachlässigen. Damit erhalten wir, ohne Berücksichtigung des Rauschfeldes B_n , das Gleichungssystem

$$\frac{dM_v}{dt} = -\frac{g}{2}\mu_0 n Q \gamma M_v M_z - \frac{M_v}{T_2} \quad (4.1a)$$

$$\frac{dM_z}{dt} = \frac{1}{2}\mu_0 n Q \gamma M_v^2 \quad . \quad (4.1b)$$

Dieses Differentialgleichungssystem ist analytisch leicht lösbar. Dazu führen wir folgende Transformation durch:

$$v = \frac{b}{a} M_v \quad (4.2a)$$

$$z = M_z + M_k \quad (4.2b)$$

$$\text{mit } a = \frac{g}{2}\mu_0 n Q \gamma, \quad b=1 \quad \text{und} \quad M_k = \frac{2}{9\mu_0 n Q \gamma T_2} \quad .$$

Eingesetzt in (4.1) erhalten wir das transformierte System

$$\dot{v} = -a v z \quad (4.3a)$$

$$\dot{z} = a v^2 \quad (4.3b)$$

mit der Lösung

$$v(t) = z_0 \frac{1}{\cosh\{\lambda(t-\tau_D)\}} \quad (4.4a)$$

$$z(t) = z_0 \tanh\{\lambda(t-\tau_D)\} \quad , \quad (4.4b)$$

wobei $\lambda = a z_0$, $\tau_D = -\frac{1}{\lambda} \log\left(\frac{2 z_0}{v_0}\right)$ und z_0 bzw. v_0 durch die Anfangsbedingungen

$$v(t=0) = v_0 \quad (4.5a)$$

$$z(t=0) = z_0 \quad (4.5b)$$

gegeben sind.

Nach Rücktransformation dieser Lösungen ergibt sich für die Komponenten der Magnetisierung

$$M_V(t) = 3(M_O - M_k) \frac{1}{\cosh\{(M_O - M_k)a(t - \tau_D)\}} \quad (4.6a)$$

$$M_z(t) = (M_O - M_k) \cdot \tanh\{(M_O - M_k)a(t - \tau_D)\} \quad (4.6b)$$

mit

$$\tau_D = -\frac{1}{a(M_O - M_k)} \cdot \log\left(2 \frac{(M_O - M_k)}{\frac{M_{Vn}}{3}}\right) \quad (4.7)$$

M_O ist die Anfangsmagnetisierung in z-Richtung. Die Grösse M_{Vn} entspricht dem Anfangswert der Quermagnetisierung. Dieser Wert kann aus dem thermischen Rauschfeld B_n des Schwingkreises bestimmt werden. Die Verzögerungszeit τ_D des ersten Pulses ist durch die Anfangswerte von M_V und M_z sowie der Schwellenmagnetisierung M_k bestimmt. In Figur 4.1 sind die berechneten Lösungen von (4.6) und ein berechneter Puls (angedeutet durch die eingezeichneten Kreise) dargestellt. An Stelle der Quermagnetisierung ist die zu M_V proportionale Raserspannung aufgetragen.

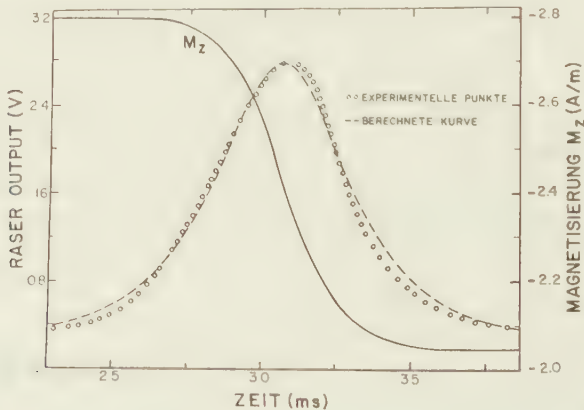


Fig.4.1: Berechneter Raserpuls (unterbrochene Linie) und Verlauf der z-Magnetisierung. Die eingezeichneten Kreise entsprechen einem gemessenen Puls.

Experiment und Theorie stimmen bemerkenswert gut überein. Dies ist ein erstaunliches Ergebnis wenn man bedenkt, dass von allen Systemparametern einzig der Füllfaktor η nicht direkt gemessen und nur durch Anpassen bestimmt werden kann. Der so ermittelte Wert $\eta=0.57$ liegt im Bereich der Erwartungen.

Die Abhängigkeit der Pulshöhe und der Verzögerungszeit von der Anfangsmagnetisierung M_0 ist für einen festen Schwellenwert aus Figur 4.2 ersichtlich. Die eingezeichneten ausgefüllten Punkte

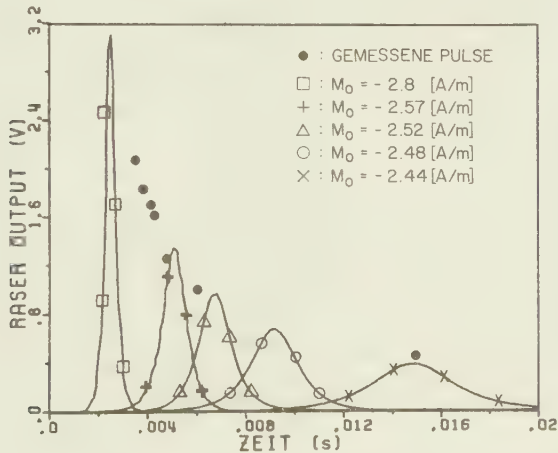


Fig.4.2: Gemessene und berechnete Abhängigkeit der Pulsamplitude und der Verzögerungszeit von der Anfangsmagnetisierung M_0 .

entsprechen gemessenen Pulsamplituden bei gleichem M_k aber verschiedenen M_0 . Diese Anfangsmagnetisierung können wir durch Variation der Mikrowellenleistung verändern. Weil sich dadurch die Spintemperatur ändert, hat dies einen direkten Einfluss auf die Längsmagnetisierung.

Die effektive Rauschmagnetisierung M_{vn} , die diesen Berechnungen zugrunde liegt, kann aus der stationären Lösung der Gleichung (2.13b) berechnet werden, wenn $B_1=B_n$ gesetzt wird. Dies ergibt

$$M_{vn} = \gamma T_2 |M_0| B_n, \quad (4.8)$$

wobei B_n durch die Beziehung (2.11) gegeben ist. Der Vergleich der berechneten und gemessenen Verzögerungszeiten der Pulsmaxima in Figur 4.2 zeigt, dass mit dem thermischen Rauschfeld B_n die Zeit τ_D befriedigend erklärt werden kann.

4.1.2. Mittel- und langfristiges Verhalten

Im mittelfristigen Verhalten, mit Zeiten von der Größenordnung 0.3-1.0 sec, spielen die Kopplungszeiten τ_{AlSS}^o und τ_{AlSS}^r eine entscheidende Rolle. Dagegen ist die Kopplung an das Mikrowellenfeld in diesem Zeitbereich von untergeordneter Bedeutung ($t \ll \tau_{Pol}$). Folglich kann der Pumpterm im allgemeinen Gleichungssystem (2.14) vernachlässigt werden. Damit erhalten wir

$$\frac{dM_v}{dt} = \left(-\frac{9}{2} \mu_0 n Q \gamma M_v + 9 \gamma B_n' \right) M_z - \frac{M_v}{T_2} \quad (a)$$

$$\frac{dM_z}{dt} = \left(\frac{1}{2} \mu_0 n Q \gamma M_v - \gamma B_n' \right) M_v - \frac{AC}{6} \frac{1}{\tau_{AlSS}^r} (\beta_{Al}^r - \beta_{SS}) \quad (b)$$

$$\beta_{Al}^r = 6 M_z / (AC) \quad (c)$$

$$\frac{d\beta_{SS}}{dt} = -\frac{c_{Al}^o}{c_{SS}} \frac{1}{\tau_{AlSS}^o} (\beta_{SS} - \beta_{Al}^o) - \frac{c_{Al}^r}{c_{SS}} \frac{1}{\tau_{AlSS}^o} (\beta_{SS} - \beta_{Al}^r) \quad (4.9)$$

$$- \frac{1}{\tau_{SSL}} (\beta_{SS} - \beta_L) \quad (d)$$

$$\frac{d\beta_{Al}^o}{dt} = \frac{1}{\tau_{AlSS}^o} (\beta_{Al}^o - \beta_{SS}) \quad (e)$$

$$\text{mit } A = \frac{\hbar \omega}{k_B}, \quad C = \frac{1}{2} N_O \gamma \hbar.$$

Die Anfangsbedingungen lauten

$$M_v(0) = M_{vn}, \quad M_z(0) = M_o, \quad \beta_{SS}(0) = \beta_{Al}^o = \beta_{Al}^r = \frac{6 M_o}{AC}. \quad (4.10)$$

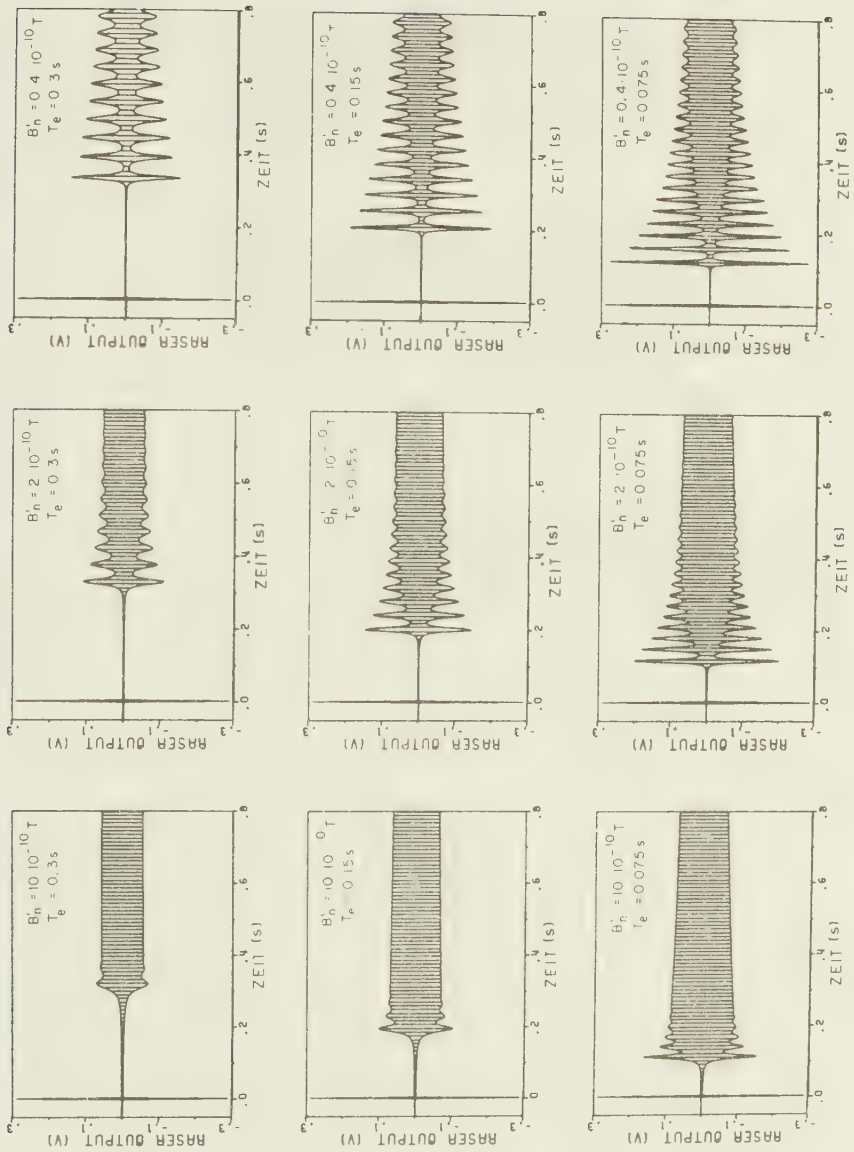


Fig.4.3: Berechneter Rasereinschwingvorgang für verschiedene Rauschfelder B_0 und Kopplungszeiten T_e ($\eta=0.57$, $Q=60$, $M_0=-2.85 \text{ A/m}$).

Bei der Interpretation des mittelfristigen Verhaltens zeigt es sich, dass das Rauschfeld B'_n in wesentlicher Weise das Strahlungsverhalten beeinflusst. Die Grösse dieses effektiven Feldes bestimmt zusammen mit der Kopplungszeit τ_{AlSS}^r die Dämpfung der Relaxationsoszillationen und die Zeit zwischen dem ersten Puls und den folgenden Pulsen, die sogenannte Totzeit. Die Grössenordnung von B'_n , die zu guter experimenteller Uebereinstimmung führt, liegt um einen Faktor 100 höher, als der Wert, der aus dem thermischen Rauschen (Gleichung 2.11) für B_n ermittelt wird. Diese bemerkenswerte Diskrepanz kann mit unseren einfachen Modellvorstellungen nicht erklärt werden. Alle Versuche, den Rauschterm anders zu simulieren, oder das effektive Rauschfeld durch eine statistische Verteilung zu ersetzen, haben zu keinem positiven Ergebnis geführt. In Figur 4.3 sind einige numerisch bestimmte Lösungen des Einschwingvorgangs für verschiedene Kopplungszeiten $T_e (= \tau_{\text{AlSS}}^r)$ und B'_n zur Illustration dieses ungelösten Problems wiedergegeben.

In Figur 4.4 wird ein beobachteter Einschwingvorgang mit der Computerlösung verglichen. Zu diesem Zweck werden die gekoppelten Differentialgleichungen (4.9) mit Hilfe einer speziellen Computersimulationssprache der IBM (CSMP III) auf dem Rechner der Universität Zürich (IBM 370) numerisch integriert und die Lösungen graphisch dargestellt. Wir geben den Verlauf der Raser-Spannung ($\sim M_V$) und der Längsmagnetisierung M_z wieder.

Der Raser startet mit $p < -1$ als Anfangsbedingung. Ein erster Puls baut sich auf und M_z geht dabei in einen Wert mit $M_z > M_k$ über. Dies hat zur Folge, dass die kohärenten Selbstoszillationen zusammenbrechen. Als Folge des nun bestehenden Temperaturungleichgewichts der beiden ^{27}Al Subsysteme fliesst Energie von dem Reservoir der raserinaktiven Spins ($\mathcal{H}_{\text{Al}}^o$) über das Dipol-Dipolreservoir ($\mathcal{H}_{\text{SS}}$) zum raseraktiven Spinsystem ($\mathcal{H}_{\text{Al}}^r$), wie es auch aus Figur 2.5 hervorgeht. Durch diese Energiezufuhr wird M_z des Raserübergangs wieder negativer und erreicht nach einer gewissen Zeit, die im wesentlichen durch τ_{AlSS}^r bestimmt ist, die Schwelle ($p = -1$). Nach dieser Totzeit setzen die Selbstoszillationen wieder ein. Da nun aber M_z in der Nähe der Schwelle ist ($p \approx -1$), werden die folgen-

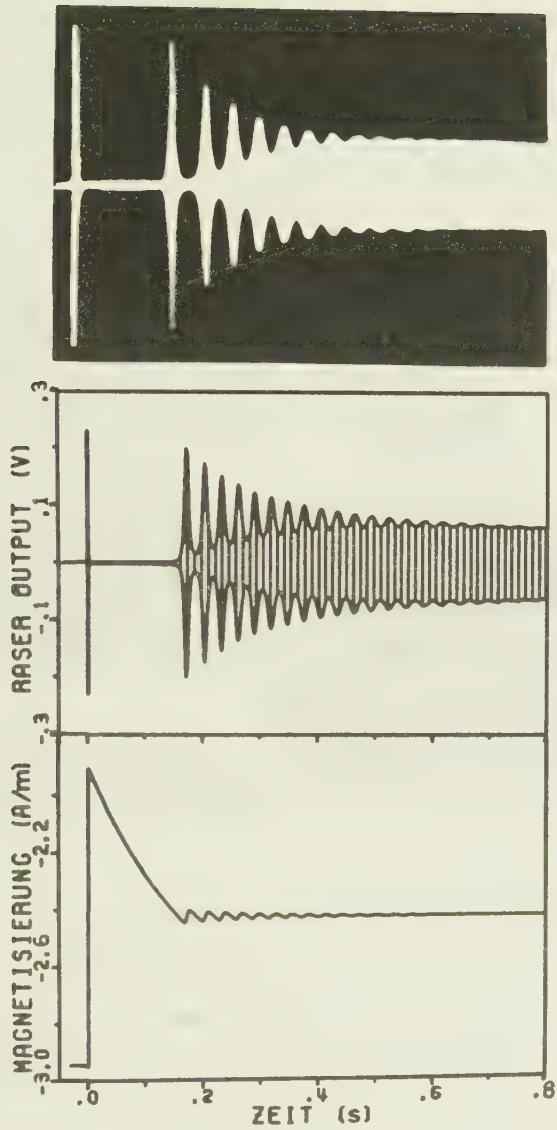


Fig.4.4: Gemessener (Oben) und berechneter (Mitte) Einschwingvorgang des Lasers. Die untere Kurve stellt den Verlauf der Längsmagnetisierung dar.

den Pulse entsprechend kleiner und die Amplitude geht nie mehr ganz auf Null zurück. Diese gedämpften Relaxationsoszillationen der Ordnungsparameter M_v (und M_z) sind typisch für den Rubinraser und unabhängig von der Mikrowellenpumpe unter der Annahme, dass die Anfangsbedingungen gleich sind. Schalten wir nämlich kurz vor dem Start ("Q-Switch") die Mikrowellenpumpe aus, erhalten wir das gleiche Resultat. Dies bestätigt, dass gerade für diesen Einschwingvorgang das Wärmereservoir der raserinaktiven Spins und seine Kopplung via Dipol- Dipolreservoir an den strahlenden Mode von bestimmender Bedeutung ist.

Im Langzeitbereich, mit Zeiten grösser als 1 sec, bestimmt die Mikrowellenpumpe den stationären Zustand. Ohne Pumpe geht die Amplitude der Raserstrahlung kontinuierlich gegen Null (Figur 4.5a).

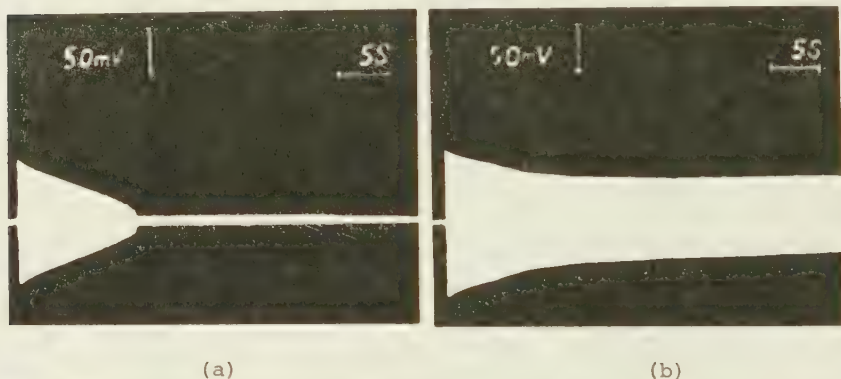


Fig.4.5: Gemessenes Langzeitverhalten des Rasers ohne (a) und mit (b) eingeschalteter Mikrowellenpumpe.

Mit eingeschalteter Mikrowellenpumpe (Figur 4.5b) erreicht das System nach einigen Sekunden den stationären Zustand. Der Ordnungsparameter ist durch die Beziehung (3.10) mit der Pumpmagnetisierung, die ein Mass für die Mikrowellenpumpleistung ist, verknüpft.

4.2. Kurzzeitverhalten des stark gepumpten Rasers

Wir sprechen von einem stark gepumpten Raser, wenn sich durch Erhöhung des Q-Wertes oder Vergrößerung der Inversion, der Pumpparameter p deutlich vom Schwellwert ($p=-1$) unterscheidet. Unter diesen Umständen erscheint an Stelle des ersten superradianten Pulses (Figur 4.1) eine Pulssequenz, wie sie als Beispiel in Figur 4.6 dargestellt ist (bei $p=-2$).

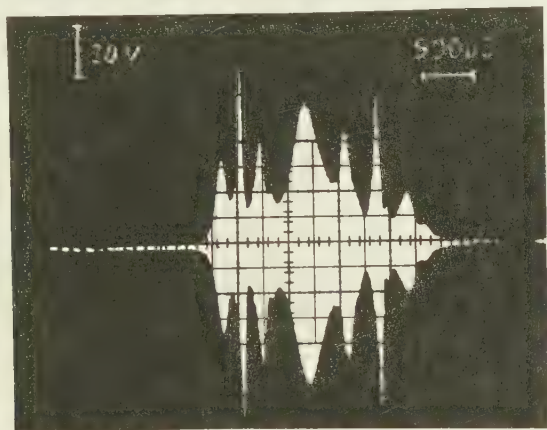


Fig.4.6: Typisches Pulsmuster (Kurzzeitverhalten) des stark gepumpten Rasers.

Zur Interpretation dieser Pulssequenz ist es notwendig, das gesamte Spin $5/2$ -System der ^{27}Al Kerne zu betrachten. Wie wir im Kapitel 2.1.1. gesehen haben sind die fünf $\Delta m = \pm 1$ NMR-Übergänge bei unserem Arbeitswinkel deutlich quadrupolar aufgespalten. Die Resonanzfrequenzen unterscheiden sich bei diesem Winkel und einem Feld von 1.1 T um je ca. 50 kHz. In Figur 4.7 sind die fünf berechneten Linien (simulierte Gaussverteilungen) der ^{27}Al Absorptionssignale im gleichen Frequenzmassstab wie die Resonanzkurve unseres Schwingkreises mit $Q=115$ aufgezeichnet.

Ist der Schwingkreis auf die Zentrallinie abgestimmt, dann ist für die übrigen vier der Schwingkreis verstimmt. Dies hat zur Folge, dass die Signale dieser Linien einen Dispersionsanteil (Phasenverschiebung) aufweisen. Gleichzeitig werden aber die Sig-

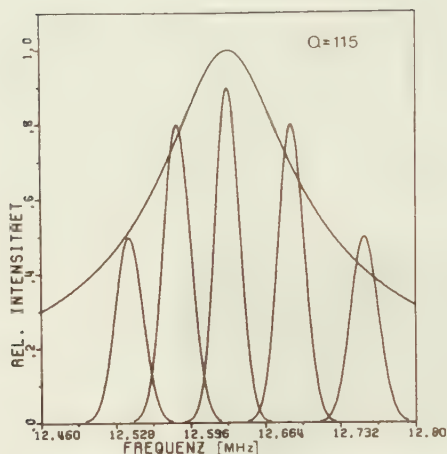


Fig.4.7: Vergleich der Lage und Breite der fünf $\Delta m = \pm 1$ Absorptionssignale mit der Resonanzkurve des Schwingkreises.

nale kleiner, da der Q-Wert, den diese Linien 'sehen', abnimmt. Dies können wir näherungsweise durch ein effektives Q_{eff} ausdrücken. Aus der stationären Lösung der Differentialgleichung des Schwingkreises findet man:

$$Q_{\text{eff}}(\omega) = \frac{\omega / \omega_c}{\sqrt{\frac{Q^2}{\omega^2 \omega_c^2} (\omega^2 - \omega_c^2)^2 + 1}} Q \quad . \quad (4.11)$$

Jeder Linie entspricht eine eigene kritische Magnetisierung M_k^i . Diese hängt von der Uebergangswahrscheinlichkeit bzw. dem Spinfaktor Γ_i , der Linienbreite T_{2i} und dem Q-Wert Q_{eff}^i ab.

Es gilt:

$$M_k^i = - \frac{2}{\Gamma_i^2 T_{2i} Q_{\text{eff}}^i \gamma \mu_0 \eta} \quad . \quad (4.12)$$

Die Werte für Γ_i können aus der Tabelle 2.1 entnommen werden. In der nachfolgenden Tabelle 4.1 finden wir eine Zusammenstellung der wesentlichen Parameter der fünf $\Delta m = \pm 1$ Übergänge bei einer (Anfangs-) Spintemperatur von -6 mK.

Raserpulse (Riesenpulse) sind möglich, wenn $M_k^i > M_O^i$ ist. M_O^i ist die Anfangsmagnetisierung in z-Richtung. Unter den angegebenen Bedingungen (Tabelle 4.1) wären Pulse von drei verschiedenen Uebergängen zu erwarten (b,c,d). Für stationäre Raseroszillationen muss die Bedingung $p < -1$ bzw. $M_e^i < M_k^i$ erfüllt sein, was nur beim Zentralübergang der Fall ist.

	Uebergang	Frequenz	Γ_i^2	Q_{eff}^i	T_{2i} μs	M_k^i A/m	M_O^i A/m	M_e^i A/m
e	$-\frac{5}{2} \leftrightarrow -\frac{3}{2}$	12.754	5	50	27.2	-5.89	-3.41	-1.97
d	$-\frac{3}{2} \leftrightarrow -\frac{1}{2}$	12.688	8	81	28.8	-2.14	-3.1	-1.96
c	$-\frac{1}{2} \leftrightarrow \frac{1}{2}$	12.630	9	115	30.6	-1.27	-2.8	-1.95
b	$\frac{1}{2} \leftrightarrow \frac{3}{2}$	12.584	8	86	27.2	-2.3	-2.55	-1.95
a	$\frac{3}{2} \leftrightarrow \frac{5}{2}$	12.540	5	60	27.2	-4.91	-2.31	-1.94

Tab.4.1: Thermische Gleichgewichtsmagnetisierungen M_O und berechnete kritische Magnetisierungen M_k bei $B_O = 1.1T$, $\Theta = -6mK$ und $Q = 115$.

Zur Erklärung einer ganzen Pulssequenz gilt es zu beachten, dass jeder einzelne $\Delta m = \pm 1$ Puls die Besetzungszahlen der Energieniveaus beeinflusst. Der Besetzungszahlunterschied des Strahlungs-Uebergangs wird kleiner oder invertiert. Dadurch werden die Populationsunterschiede der beiden benachbarten Uebergänge vergrößert, womit die entsprechenden Magnetisierungen negativer werden. Dieser 'dynamische Pumpeffekt', der in Figur 4.8 symbolisch dargestellt ist, hilft wesentlich mit, die Startbedingung $M_O^i < M_k^i$ zu erfüllen oder zu verbessern. Die Folge davon ist eine Sequenz von Pulsen mit verschiedenen Uebergangsfrequenzen. Die Enveloppe eines solchen Pulsmusters ist in Figur 4.6 dargestellt.

Bei der experimentellen Analyse eines solchen Pulsmusters konnten wir verifizieren, dass sich die Trägerfrequenz (=Hochfrequenz) von Puls zu Puls ändert. Dazu haben wir uns folgender Technik bedient:

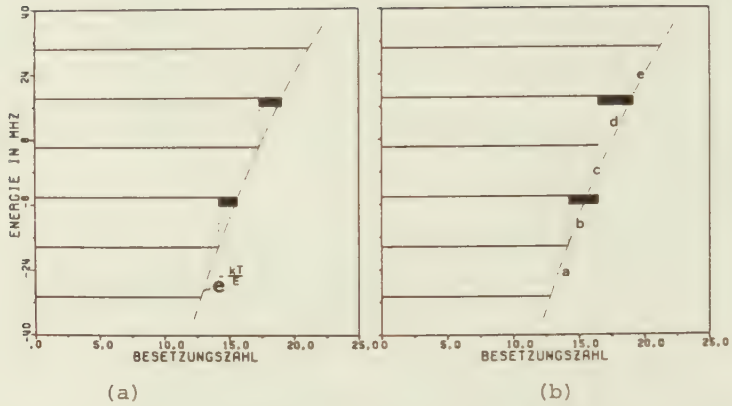


Fig.4.8: Relative Besetzungszahlen der 6 Energieniveaus von ^{27}Al . (a): vor dem Puls des Uebergangs c
(b): nach dem Raserpuls c.

In einem Hochfrequenzmischer wird das Rasersignal mit einem konstanten Hochfrequenzträger anhand des niederfrequenten Ueberlagerungssignals verglichen. Für die vollständige Analyse ist es notwendig, dieses Experiment fünf mal nacheinander durchzuführen, wobei jedesmal eine andere der fünf Larmorfrequenzen (Tab.4.1) als Referenzfrequenz gewählt wird.

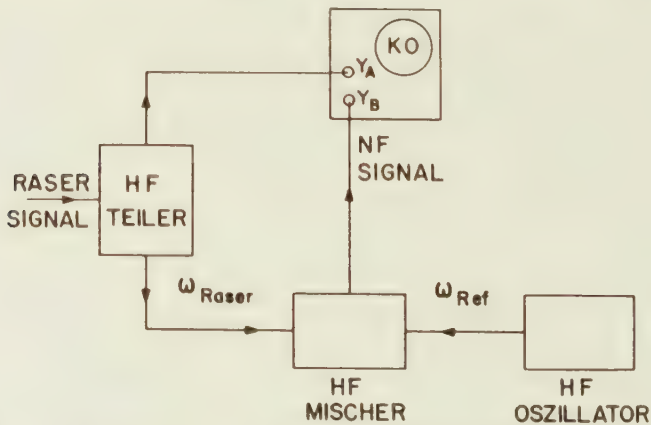


Fig.4.9: Messanordnung für die experimentelle Analyse der 'Hopping-Pulse'.

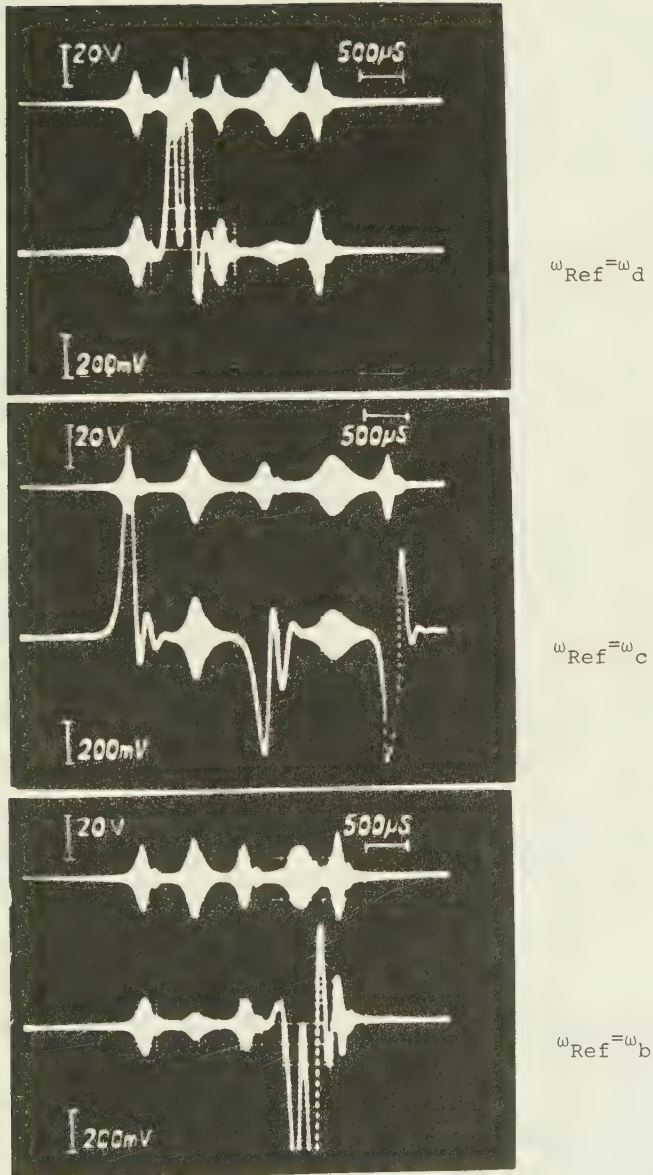


Fig.4.10: Resultat der experimentellen Frequenzanalyse einer Pulssequenz. Die obere Kurve zeigt jeweils das Pulsmuster, die untere das Ueberlagerungssignal des Mischers.

Figur 4.10 zeigt das Resultat einer, mit der Anordnung von Figur 4.9, durchgeführten experimentellen Frequenzanalyse. Der Gütefaktor betrug bei diesem Experiment 103 und der Schwingkreis war auf die Zentrallinie (ω_c) abgestimmt. Unter diesen Bedingungen treten drei verschiedene Mischfrequenzen, entsprechend den Raserfrequenzen auf, wobei die Zentrallinie mehrmals erscheint.

Die theoretische Analyse dieser Pulssequenz beruht auf einem System von gekoppelten Bloch-Gleichungen, und führt nur zu qualitativer Uebereinstimmung mit den experimentellen Werten.

Für jeden einzelnen $\Delta m = \pm 1$ Uebergang setzen wir eine Bloch-Gleichung an. Da uns hier nur das Kurzzeitverhalten interessiert, können wir die Gleichungen in der Form (4.1) schreiben. Zusätzlich müssen wir der Tatsache Rechnung tragen, dass die Längsmagnetisierungen von benachbarten Uebergängen miteinander gekoppelt sind. Bei jedem Puls ändert sich die z-Magnetisierung des entsprechenden Uebergangs. Dadurch werden die Längsmagnetisierungen der benachbarten Uebergänge negativer. Diese betragsmässige Aenderung ist genau halb so gross, wie die durch den superradianten Puls bewirkte Aenderung von M_z des Raserübergangs. Da die Aenderung von M_z proportional ist zu M_v^2 (Gleichung 4.1b) führt dies auf das folgende Gleichungssystem:

$$\frac{dM_{va}}{dt} = -5gQ_a M_{za} M_{va} - \frac{M_{va}}{T_{2a}} \quad (a)$$

$$\frac{dM_{za}}{dt} = gQ_a M_{va}^2 - \frac{1}{2}(gQ_b M_{vb}^2) \quad (b)$$

$$\frac{dM_{vb}}{dt} = -8gQ_b M_{zb} M_{vb} - \frac{M_{vb}}{T_{2b}} \quad (c)$$

$$\frac{dM_{zb}}{dt} = gQ_b M_{vb}^2 - \frac{1}{2}g(Q_a M_{va}^2 + Q_c M_{vc}^2) \quad (d)$$

$$\frac{dM_{vc}}{dt} = -9gQ_c M_{zc} M_{vc} - \frac{M_{vc}}{T_{2c}} \quad (e)$$

$$\frac{dM_{zc}}{dt} = gQ_c M_{vc}^2 - \frac{1}{2}g(Q_b M_{vb}^2 + Q_d M_{vd}^2) \quad (f)$$

$$\frac{dM_{vd}}{dt} = -8gQ_d M_{zd} M_{vd} - \frac{M_{vd}}{T_{2d}} \quad (g)$$

$$\frac{dM_{zd}}{dt} = gQ_d M_{vd}^2 - \frac{1}{2}g(Q_c M_{vc}^2 + Q_e M_{ve}^2) \quad (h)$$

(4.13)

$$\frac{dM_{ve}}{dt} = -5gQ_e M_{ze} M_{ve} - \frac{M_{ve}}{T_{2e}} \quad (i)$$

$$\frac{dM_{ze}}{dt} = gQ_e M_{ve}^2 - \frac{1}{2}g(Q_d M_{vd}^2) \quad (k)$$

mit $g = \frac{1}{2}\mu_0 n \gamma$.

Die Anfangsbedingungen von M_z sind durch die stationäre Spintemperatur gegeben, was für $\Theta = -6$ mK zu den Werten der Tabelle 4.1 führt. Die Anfangswerte der Quermagnetisierungen können aus dem thermischen Rauschen (Gleichung 4.8) für die entsprechenden M_0 , T_2 und Q -Werte ermittelt werden.

In Figur 4.11 vergleichen wir den Verlauf eines gemessenen Puls-musters mit den Lösungen des Gleichungssystems (4.13). Die Raser-spannung ist durch die Querkomponenten M_{vi} bestimmt. Es gilt

$$V \sim \sqrt{\sum_i M_{vi}^2}, \quad (i = a, b, c, d, e) \quad (4.14)$$

Im beschriebenen Modell haben wir die durch die Verstimmung des Schwingkreises auftretenden Dispersionseffekte vernachlässigt. Dies scheint berechtigt zu sein, denn ein Versuch mit einem verfeinerten Modell mit Dispersion hat zu einem ähnlichen Resultat geführt. Diese Vernachlässigung können wir auch experimentell überprüfen. Zu diesem Zweck führen wir ein Experiment durch, bei dem ein rein absorptives Verhalten vorliegt. Dazu wird die Spannung an der Abstimm-Varicapdiode mit einem Mikroprozessor

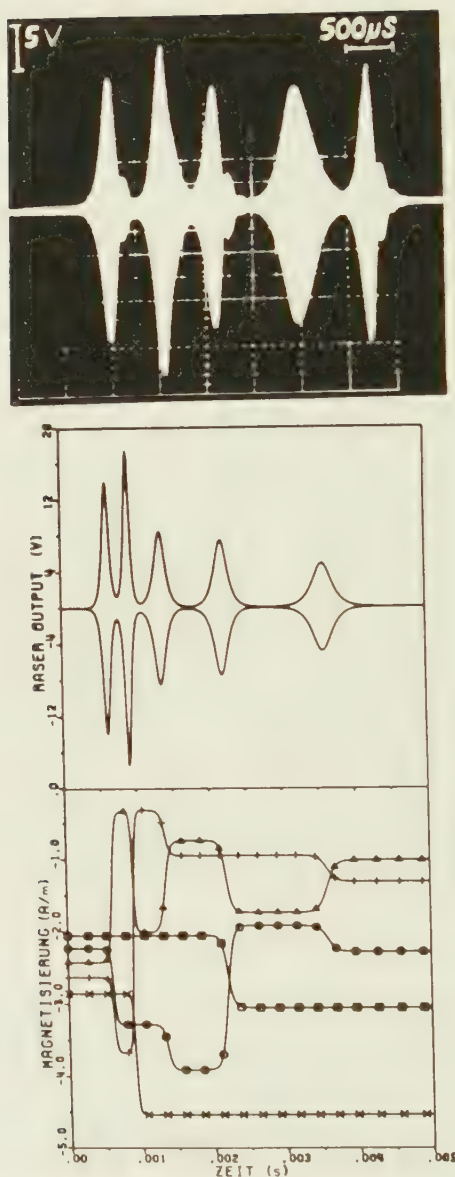


Fig.4.11: Vergleich einer gemessenen (Oben) und berechneten (Mitte) Pulsfolge mit dem Verlauf der Längsmagnetisierung (Unten). ($\theta = -6$ mK), $Q=103$).

(Motorola M6800) gesteuert. Dadurch ist es möglich, die Resonanzfrequenz des Schwingkreises sequentiell auf die Larmorfrequenzen der verschiedenen Pulse abzustimmen. In Figur 4.12 sehen wir das Ergebnis dieses Experiments, das unter den Bedingungen wie bei Figur 4.11 durchgeführt wurde.

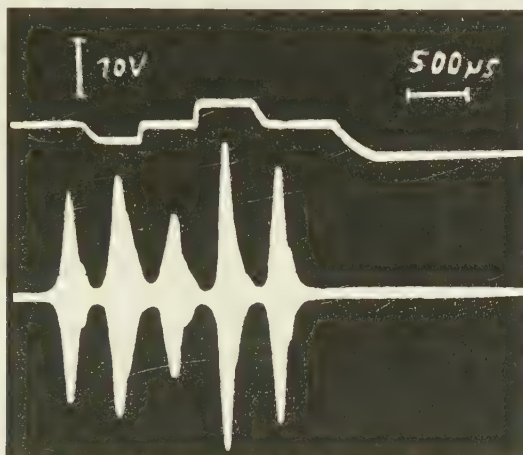


Fig.4.12: Pulssequenz bei mikroprozessor-gesteuertem Verlauf der Varicapspannung. ($\theta = -6 \text{ mK}$, $Q=103$)

Die obere Kurve stellt den Verlauf der Varicapspannung, die untere die Raser Spannung dar. Der markanteste Unterschied zwischen dem obern Bild der Figur 4.11 und der Pulse von Figur 4.12 ist die Breite des 4. Pulses. Trotzdem kann aus der qualitativ guten Uebereinstimmung der Resultate dieser beiden Experimente der Schluss gezogen werden, dass die Dispersion im Kurzzeitverhalten eine untergeordnete Rolle spielt. Dagegen zeigt der Vergleich zwischen Experiment und Theorie, dass unser einfaches Modell nicht mehr genügen kann.

An dieser Stelle muss auf ein weiterer Effekt aufmerksam gemacht werden, der in der Zwischenzeit von Bedeutung geworden ist. Bei genauerer Betrachtung der Figur 4.11 (oberes Bild) bemerkt man an den fallenden Flanken der fünf grossen $\Delta m = \pm 1$ Pulse kleine Folgepulse. Diese Erscheinung, die erst oberhalb einer gewissen Puls-

amplitude auftritt, ist ein neues physikalisches Phänomen. Die Ursache dieser kleinen Pulse, die in bedeutend ausgeprägterer Form beim CaF_2 Raser /19/ auftreten, liegt unseres Erachtens im inhomogenen Anteil der NMR-Linien, der durch eine Spinpaketverteilung berücksichtigt werden sollte. Das Auseinanderfächern der einzelnen Pakete ("Spin-Fanning") führt im Fall von Absorption zu mehreren Nulldurchgängen der Quermagnetisierung M_V .

5. WECHSELWIRKUNG DES RASERS MIT EINEM ÄUSSERN HF-FELD

Im Gegensatz zur konventionellen NMR-Technik mit linearem "Response" handelt dieses Kapitel vom nicht-linearen Verhalten eines bestrahlten Spinsystems. Insbesondere stellen wir Phänomene zur Diskussion, die sich beim Ueberlagern des selbstinduzierten Reaktionsfeldes mit einem äussern resonanten Hochfrequenzfeld ergeben. Hier manifestiert sich die nahe Verwandtschaft mit Erscheinungen der nicht linearen Quantenoptik /27/, welche dem Titel "Optische Bistabilität" subsumiert werden können und die von grossem wissenschaftlichen Interesse sind.

Während die optischen Arbeiten /6-12/ sich vorwiegend auf Systeme mit positivem Pumpparameter beschränken und damit auf das Transmissionsverhalten nicht linearer optischer Absorber innerhalb eines resonanten Hohlraums zielen /28-31/, untersuchen wir Systeme mit negativem Pumpparameter. Das optische Analogon dazu wäre der Laser in Wechselwirkung mit einem äussern Strahlungsfeld. Auf dieses Problem ist verschiedentlich hingewiesen worden /4,13,32/, experimentelle Resultate sind uns jedoch keine bekannt. Bei den optischen Arbeiten liegt ferner das Schwergewicht bei den stationären Zuständen. Demgegenüber ermöglicht uns der Raser einen Vorstoss in ein unbekanntes Feld, in die Dynamik bistabiler Lasersysteme und damit zu allgemeinen Fragestellungen, wie sie typisch für die Synergetik /33/ sind.

5.1. Stabilität stationärer Zustände in äusserem Resonanzfeld

Wir gehen aus vom raseraktiven Zustand ($p < -1$) des Zentralübergangs. Mit den Annahmen und der Notation von Kapitel 1, sowie unter Berücksichtigung der Spinfaktoren gilt

$$X = 3 \omega_t \sqrt{T_e T_2} \quad (5.1a)$$

$$Y = 3 \omega_d \sqrt{T_e T_2} \quad . \quad (5.1b)$$

dabei ist Y das äussere Feld, X die Summe aus dem äusseren Feld und dem Reaktionsfeld. Die möglichen stationären Zustände sind wieder durch die universelle Relation

$$Y(X) = X + \frac{p X}{1 + X^2}$$

gegeben.

Zur Untersuchung der Stabilität beschränken wir uns auf den Fall reiner Absorption. In der Nähe stationärer Zustände mit $M_z = \text{const.}$ können wir eine eindimensionale Bewegungsgleichung für den Ordnungsparameter ableiten. Ausgehend vom Gleichungssystem (3.1) erhalten wir mit äusserem Feld ω_d bzw. B_1^{ex} folgende verallgemeinerte Rasergleichungen:

$$\frac{dM_v}{dt} = \left(-\frac{9}{2} \mu_0 \eta Q \gamma M_v + 9 \omega_d \right) M_z - \frac{M_v}{T_2} \quad (5.2a)$$

$$\frac{dM_z}{dt} = \left(\frac{1}{2} \mu_0 \eta Q \gamma M_v - \omega_d \right) M_v - \frac{M_z - M_e}{T_e}, \quad (5.2b)$$

wo ω_d proportional zur Amplitude des äusseren Feldes ist

$$\omega_d = \gamma B_1^{\text{ex}}. \quad (5.3)$$

Unter diesen Bedingungen sind zwei Spezialfälle möglich:

- 1.) $\omega_d \uparrow \uparrow \omega_r$, in diesem Fall sprechen wir von einer kooperativen Feldkonfiguration.
- 2.) $\omega_d \uparrow \uparrow \omega_r$, was einer kompetitiven Konfiguration entspricht.

In der Nähe stationärer Lösungen können wir $\dot{M}_z$ vernachlässigen. Damit erhalten wir die gewünschte eindimensionale Bewegungsgleichung für den Ordnungsparameter M_v :

$$\dot{M}_v = -\rho - \alpha M_v - \delta M_v^2 - \varepsilon M_v^3 \quad (5.4)$$

$$\text{mit} \quad \rho = -9 \omega_d M_e \quad (5.5)$$

$$\alpha = \frac{9}{2} \mu_0 \eta Q \gamma M_e + 9 \omega_d^2 T_e + \frac{1}{T_2} \quad (5.6)$$

$$\delta = -9 \mu_0 \eta Q \gamma \omega_d T_e \quad (5.7)$$

$$\varepsilon = \frac{9}{4} \mu_0^2 \eta^2 Q^2 \gamma^2 T_e \quad (5.8)$$

Auch hier kann ein verallgemeinertes Raserpotential

$$\Phi = \rho M_V + \frac{\alpha}{2} M_V^2 + \frac{\delta}{3} M_V^3 + \frac{\varepsilon}{4} M_V^4 \quad (5.9)$$

eingeführt werden, so dass

$$\dot{M}_V = -\frac{\partial \Phi}{\partial M_V} \quad (5.10)$$

ist.

Im Gegensatz zum Raser ohne äusseres Feld mit symmetrischem Potential Φ bezüglich $M_V=0$ (Figur 3.4), hängt nun in diesem allgemeinen Fall die Form des Potentials in starkem Mass vom Pumpparameter p bzw. der Pumpmagnetisierung M_e und dem äusseren Feld B_1^{ex} bzw. ω_d ab. In Figur 5.1 sehen wir verallgemeinerte Raserpotentiale für verschiedene Kombinationen der Parameter M_e und B_1^{ex} .

Die Symmetriebrechung von Φ durch das äussere Feld B_1^{ex} geht aus Figur 5.1 deutlich hervor. Die Minima der Potentialkurven entsprechen den stabilen stationären Lösungen der Gleichung (5.2). Jede Potentialkurve der Figur 5.1 besteht aus einem kooperativen und einem kompetitiven Ast. Auf dem Kooperativen gibt es immer ein Minimum, folglich existiert dort eine stabile stationäre Lösung für den Ordnungsparameter M_V . Auf dem kompetitiven Ast gibt es nur für bestimmte Parameterkombinationen ein Minimum. Wenn es auftritt, ist es flacher als das Minimum des kooperativen Zustands. Die stationären Lösungen auf dem kooperativen Ast sind folglich stabiler, als diejenigen auf dem kompetitiven. Dies können wir auch am Verlauf der Lösungen von Gleichung (1.7) erkennen.

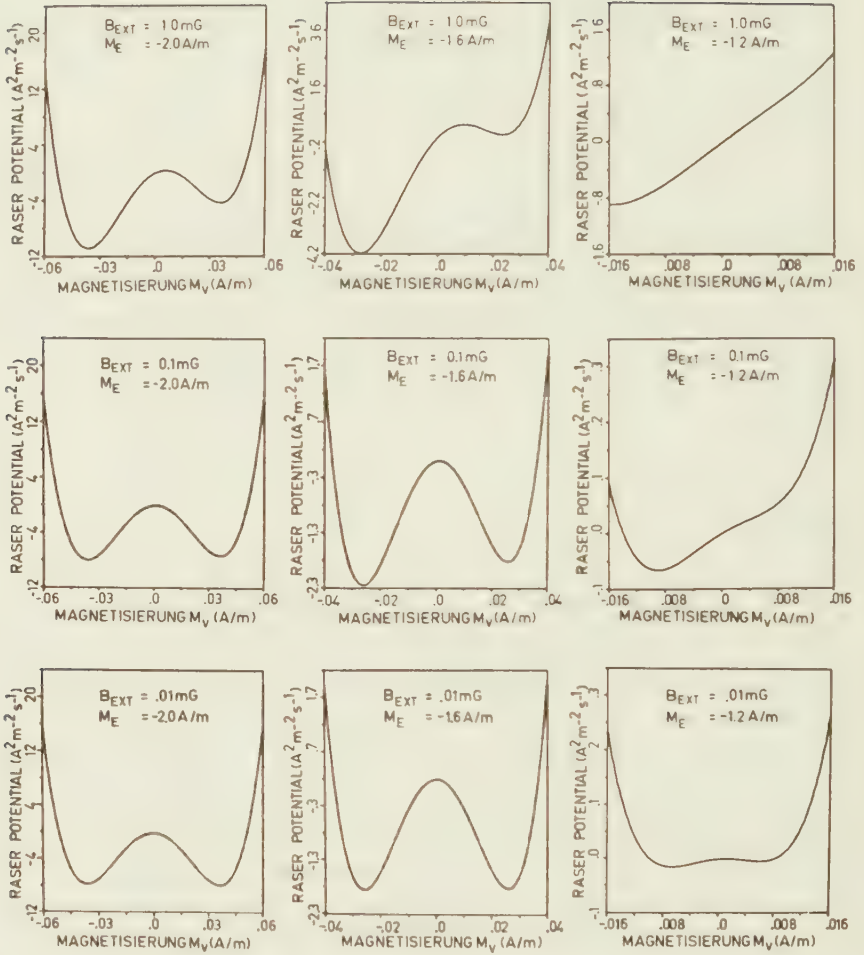


Fig.5.1: Berechnete Raserpotentiale für verschiedene Werte von B_1^{ex} und M_e .

In Figur 5.2 geben wir die stationären Lösungen als Funktion des äusseren Feldes ($Y \propto B_1^{\text{ex}}$) für $p < -1$ an.

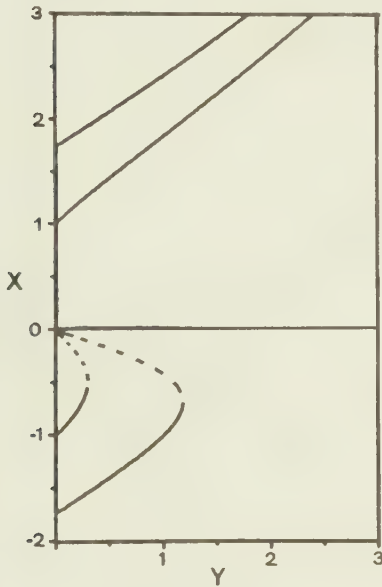


Fig.5.2: Verlauf des stationären totalen Feldes(X) in Funktion des äusseren Feldes (Y) für zwei Werte von p ($p < -1$).

Die Kurven im untern Quadranten sind die kompetitiven Aeste, wobei das Gebiet mit positiver Steigung den stabilen stationären Lösungen entspricht. Bei negativer Steigung (punktiierte Linie) sind die Lösungen instabil. Die oberen Kurven sind die kooperativen Aeste, die im ganzen Bereich (mit $Y > 0$) stabilen stationären Lösungen entsprechen.

5.2 Phasenübergang 1.Ordnung

Für die stabilen stationären Lösungen des Ordnungsparameters können wir keine analytische Beziehung angeben. Deshalb wird das Verhalten der numerisch bestimmten Lösungen von M_V in Abhängigkeit des Pumpparameters und des äusseren Feldes B_1^{ex} untersucht.

In Figur 5.3 sind für verschiedene Werte des Pumpparameters p

($p < -1$) die Lösungen M_v^{st} in Funktion des eingestrahlichten äussern Feldes aufgezeichnet.

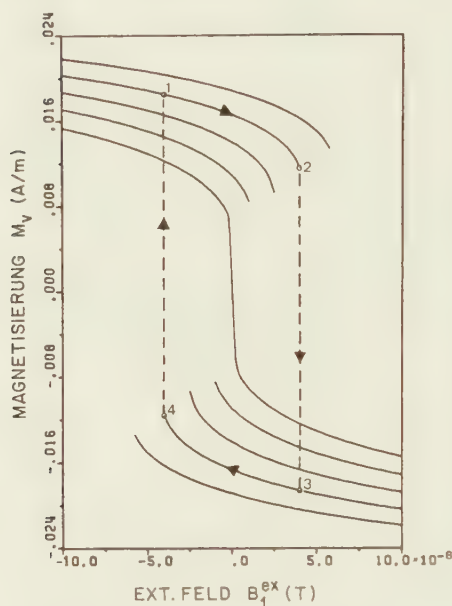


Fig.5.3: Verlauf der stabilen stationären Lösungen des Ordnungsparameters für verschiedene p in Funktion des äussern Feldes.

Ein etwas anderes Bild ergibt sich, wenn wir den Verlauf des stabilen stationären Ordnungsparameters in Funktion des Pumpparameters p darstellen. Figur 5.4 gibt diese numerisch bestimmten Lösungen wieder.

Anhand dieser Darstellungen lässt sich das Verhalten des Ordnungsparameters in Funktion von B_1^{ex} diskutieren. Wir starten mit positivem M_v und negativem B_1^{ex} , dh. beim Punkt 1 von Figur 5.3. Dieser Zustand entspricht einer kooperativen Feldkonfiguration. Verkleinern wir die Amplitude des äussern Feldes (bei festem p) erreichen wir einen Punkt mit $B_1^{ex} = 0$. Der Wert von M_v^{st} ist dabei durch die Beziehung (3.10) gegeben. Mit wachsenden Werten des äussern Feldes liegt eine kompetitive Feldkonfiguration vor, wobei der Wert des Ordnungsparameters abnimmt. Bei einer kritischen äussern Feldstärke, die wir mit B_{1c}^{ex} bezeichnen, endet die obere Kurve

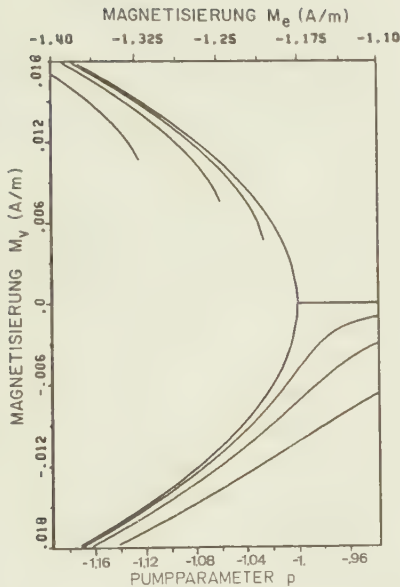


Fig.5.4: Stationärer Wert des Ordnungsparameters in Funktion des Pumpparameters für verschiedene äussere Felder B_1^{ex} .

(Punkt 2). Dort wird die (kompetitive) Lösung für M_v^{st} instabil. Der Ordnungsparameter sucht sich einen neuen stabilen Wert, der auf der entsprechenden Kurve in der rechten untern Bildhälfte (Punkt 3) gefunden wird. Bei diesem Uebergang vom kompetitiven in den kooperativen Zustand muss sich das Vorzeichen von M_v ändern. Wird B_1^{ex} wieder verkleinert bis zu negativen Werten, erreicht das System bei Punkt 4 wieder einen instabilen Zustand und springt auf den stabilen kooperativen Ausgangszustand (Punkt 1) zurück. Die Hysteresiskurve ist damit geschlossen.

Den gleichen Phasenübergang können wir auch aus Figur 5.4 herauslesen. Beim Start mit äusserem Feld auf einem oberen Ast sind wir in einem kompetitiven Zustand. Verkleinern wir den Betrag des Pumpparameters, springt der Ordnungsparameter irreversibel auf einen untern, kooperativen Ast. Dieser Phasensprung von M_v um 180° , der sich in einem Nulldurchgang der Querkomponente M_v äussert, stellt einen Phasenübergang 1.Ordnung dar.

Analog wie bei Phasenübergängen im thermischen Gleichgewicht kön-

nen wir, ausgehend vom Raserpotential Φ , die 'Raser Entropie' bzw. die 'Raseraktivität S ' und die 'spezifische Raseraktivität c ' ausrechnen. In Figur 5.5 ist der Verlauf der numerisch gefundenen Werte von S bzw. c für ein festes B_1^{ex} in Funktion des Pumpparameters bzw. der Pumpmagnetisierung dargestellt.

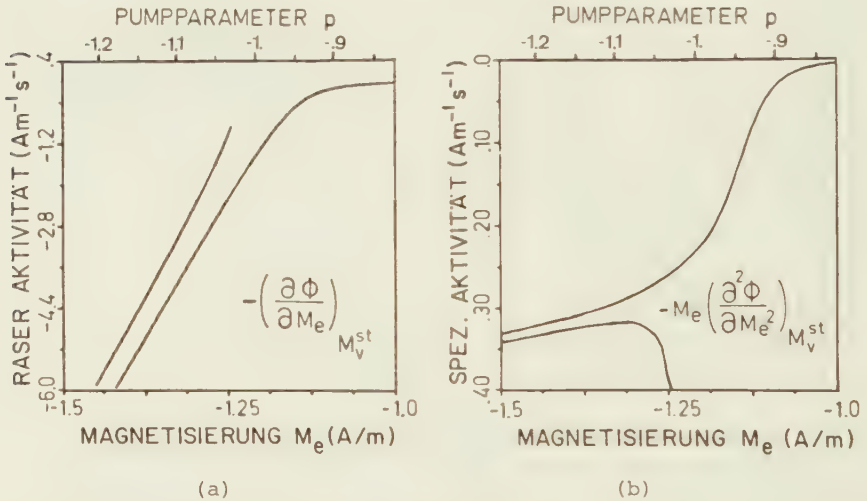


Fig.5.5: Verlauf der 'Raseraktivität S ' (a) und der 'spezifischen Raseraktivität c ' (b) in Funktion des Pumpparameters für $B_1^{\text{ex}} > 0$.

Jede dieser Kurven besteht aus einem kooperativen und einem kompetitiven Ast. Im Fall $B_1^{\text{ex}} = 0$ gibt es nur je eine Kurve, deren Verlauf in Figur 3.5 dargestellt ist.

Die erste Ableitung des Potentials, die der 'Raseraktivität' entspricht, ist an der Stelle des Phasenübergangs diskontinuierlich. Dies und die typischen Hysteresiskurven der Figur 5.3 bestätigen, dass der Sprung des Ordnungsparameters vom kompetitiven auf den kooperativen Ast als ein Phasenübergang 1. Ordnung angesehen werden darf.

5.3. Dynamik des Phasenübergangs 1.Ordnung

Nachdem wir die stationären Lösungen für den Ordnungsparameter M_V eines resonant angesteuerten Rasers kennengelernt haben, wollen wir das dynamische Verhalten von M_V experimentell und theoretisch untersuchen.

Experimentell stellt sich das Problem der Erzeugung des richtigen, äussern HF-Feldes. Seine Frequenz muss exakt mit der Raserfrequenz übereinstimmen und eine feste Phasenlage zum Reaktionsfeld muss gewährleistet bleiben. Da aber die Frequenz des Rasers nicht absolut stabil ist (siehe Kapitel 3.3.), kommt ein Hochfrequenzgenerator als äussere Strahlungsquelle nicht in Frage. Diese Schwierigkeit kann umgangen werden, wenn das Raserfeld elektronisch abgegriffen und anschliessend phasen- und amplitudenkontrolliert auf das Spinsystem zurückgekoppelt wird. Das Rückkopplungsfeld übernimmt die Rolle des äussern HF-Feldes. Seine Phase relativ zum Reaktionsfeld kann beliebig gewählt werden. Entsprechend unseren theoretischen Modellvorstellungen aus Abschnitt 5.5 beschränken wir uns auf die Werte 0° und 180° , womit wieder ein eindimensionales kritisches Verhalten erzwungen werden kann, was zu einem Phasenübergang 1.Ordnung führt /27,33/.

5.3.1. Apparatives

Zur Erzeugung des erwähnten Rückkopplungsfeldes wird das Raser-signal mit einem Hochfrequenzteiler in zwei Signale aufgespaltet, wobei das eine Signal direkt mit dem KO registriert wird. Das andere Signal wird um 40 dB verstärkt, um mit einem kontinuierlichen Phasenschieber die gewünschte Phasenlage einzustellen. Ein weiterer 30 dB Verstärker wird in Sättigung betrieben. Antiparallel geschaltete Dioden begrenzen die Hochfrequenzspannung des Ausgangssignals dieses Verstärkers. Mit dem in Sättigung betriebenen Verstärker und dem (Dioden-) Begrenzer erhalten wir ein Signal, das in einem weiten Bereich unabhängig ist von der Amplitude des Raser-(Eingangs-) Signals. Mit unserer Anordnung ist die Amplitude des Begrenzers konstant, falls der Pegel des

Rasersignals zwischen 5 mV und 500 mV liegt. Ein passiver Tiefpassfilter dient dazu, die bei der nicht linearen Verstärkung auftretenden Oberschwingungen auszufiltern. Mit einem Attenuator kann die gewünschte Feldstärke des Rückkopplungsfeldes eingestellt werden. Der angeschlossenen Hochfrequenzmischer wird so betrieben, dass mit einem kontrollierbaren äusseren Gleichstrom ($0 < I < 10 \text{ mA}$) das Feld um weitere 1 dB bis 40 dB attenuiert werden kann. Mit diesem Elektronik-Bauteil ist es ausserdem möglich, durch einen Vorzeichenwechsel des äusseren Gleichstroms die Hochfrequenzphase um 180° zu kehren. In Figur 5.6 ist das Prinzipschema dieser Messanordnung dargestellt.

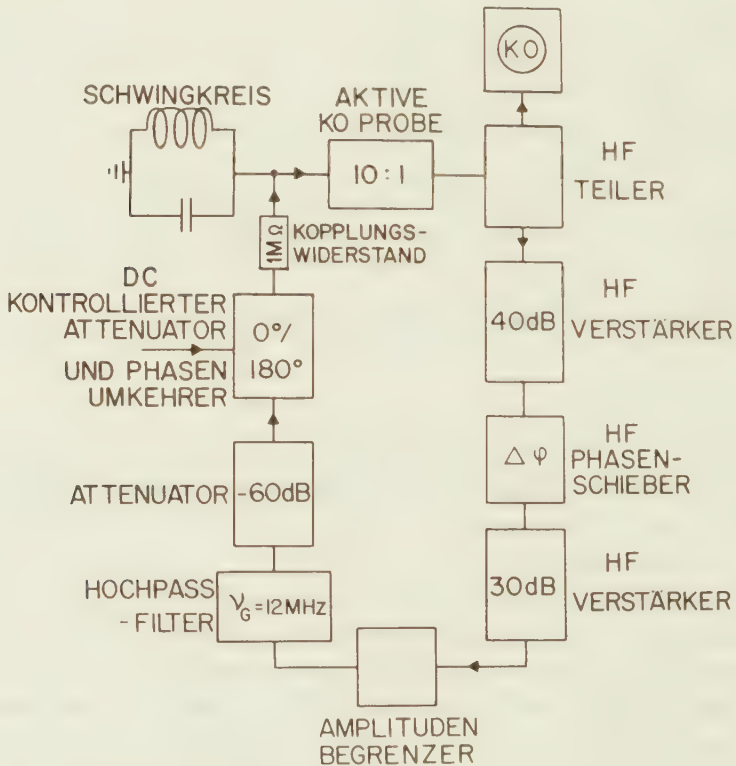


Fig.5.6: Experimentelle Anordnung für den Raser mit einem resonanten äusseren HF-Feld.

5.3.2. Experimente

Ausgangspunkt für die nachfolgend beschriebenen Experimente ist der stationäre Zustand des Rasers mit äusserem Feld bei einer kooperativen Feldkonfiguration. Zu einem definierten Zeitpunkt wird die Phase zwischen Reaktionsfeld und Rückkopplungsfeld sprunghaft um 180° geändert. Die zeitliche Form der Antwort auf diese Störung haben wir in drei verschiedenen Experimenten studiert.

Zur Diskussion des Vorgehens stellen wir in Figur 5.7 die stationären Werte des totalen Strahlungsfeldes X bei vorgegebenem Pumpparameter in Funktion des äussern Feldes $Y=B_1^{\text{ex}}$ dar.

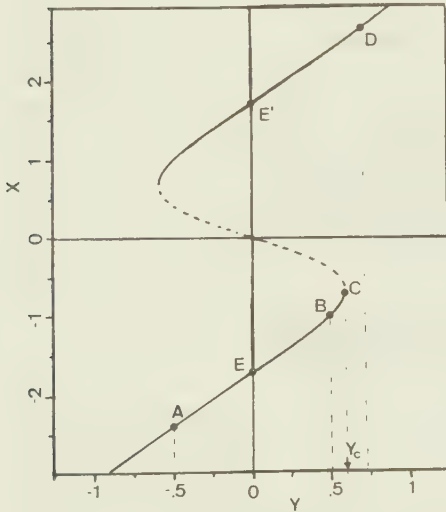


Fig.5.7: Stationäre Werte des totalen Feldes (X) in Funktion des äussern Feldes (Y) bei festem Pumpparameter.

Die Punkte E und E' entsprechen den stationären Lösungen des freischwingenden Rasers. Die Punkte A und D bezeichnen stabile Lösungen auf den kooperativen Äesten. B ist eine mögliche stabile Lösung für eine kompetitive Feldkonfiguration. Bei C kommt es zur Instabilität. Das zu diesem 'kritischen Punkt' gehörende äussere Feld bezeichnen wir mit Y_c bzw. B_{1c}^{ex} . Seine Feldstärke hängt nur vom Pumpparameter p ab. Aus der universellen Gleichung (1.7) findet man

$$Y_C = \sqrt{\lambda} \left\{ 1 + \frac{P}{1+\lambda} \right\} \quad , \quad (5.11)$$

$$\text{mit} \quad \lambda = \frac{P-2 + \sqrt{P^2 - 8P}}{2} \quad . \quad (5.12)$$

Daraus ergibt sich

$$B_{1c}^{\text{ex}} = \frac{Y_C}{3\gamma\sqrt{T_2 T_e}} \quad . \quad (5.13)$$

In einem ersten Experiment wird auf dem kooperativen Ast (Punkt A) mit einem äusseren Feld Y , dessen Amplitude kleiner ist als der kritische Wert ($|Y| < |Y_C|$), gestartet. Nun kehren wir innerhalb von Millisekunden die Phase des äusseren Feldes um 180° . Der neue stabile stationäre Zustand befindet sich auf dem kompetitiven Ast (Punkt B). Wir verfolgen somit die Dynamik des Uebergangs $A \rightarrow B$. Das Resultat ist eine gedämpfte amplitudenmodulierte Oszillation. In Figur 5.8 sehen wir die gemessene Dynamik und den

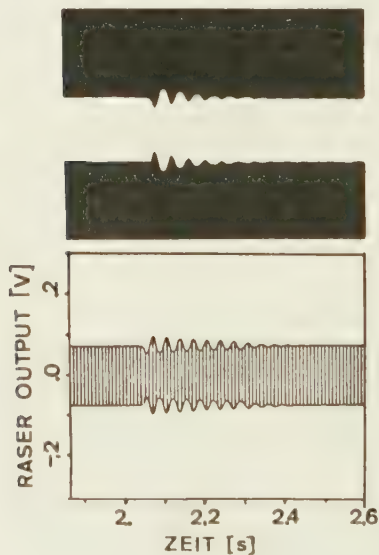


Fig.5.8: Gemessene (Oben) und berechnete (Unten) Dynamik beim Uebergang vom kooperativen in den kompetitiven Zustand, wobei $|Y| < |Y_C|$ ist.

numerisch bestimmten Verlauf dieses Uebergangs. Für die rechnerische Lösung wurde das Differentialgleichungssystem (2.14) benützt, wobei in der M_V - und M_Z -Gleichung das äussere Feld hinzugefügt werden muss.

In einem zweiten Experiment wird wieder auf dem kooperativen Ast in der Nähe von Punkt A gestartet. Die Amplitude des äussern Feldes ist nun $|Y| > |Y_C|$. Kehren wir nun die Phase um 180° so wissen wir, dass kein stabiler kompetitiver Zustand möglich ist. Der einzige stabile Zustand ist nun auf dem oberen kooperativen Ast (Punkt D). Das totale Feld und damit auch unser Ordnungsparameter M_V muss dabei das Vorzeichen ändern.

Wir beobachten anwachsende amplitudenmodulierte Oszillationen. Zu einem gewissen Zeitpunkt wird das interne Reaktionsfeld Null und damit geht das Phasengedächtnis der Spins innerhalb der Zeit T_2 verloren. Nun bestimmt das äussere Feld den weiteren Verlauf.

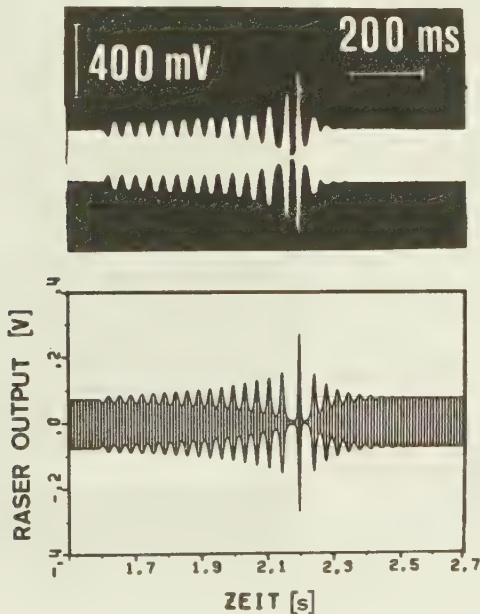


Fig.5.9: Gemessene und berechnete Dynamik des Phasenübergangs 1.Ordnung.

Die Einzelspins folgen in Phase dem äussern Feld und nach wenigen gedämpften Oszillationen ist der neue kooperative Gleichgewichtszustand erreicht. In Figur 5.9 sind der numerisch berechnete Verlauf und das experimentelle Ergebnis dieses Phasenübergangs dargestellt.

In einem dritten Experiment sind die Anfangsbedingungen gleich wie beim Zweiten ($|Y| > |Y_C|$). Ausgangspunkt ist wieder ein Zustand mit kooperativer Feldkonfiguration. Nach dem Vorzeichenwechsel des äussern Feldes kontrollieren wir die Phase dieses Feldes elektronisch, und zwar erzeugen wir einen Zustand, wo die beiden Felder immer antiparallel sind. Das System bleibt also in einem kompetitiven Zustand, der nicht mehr stabil ist. Der zeitliche Ver-

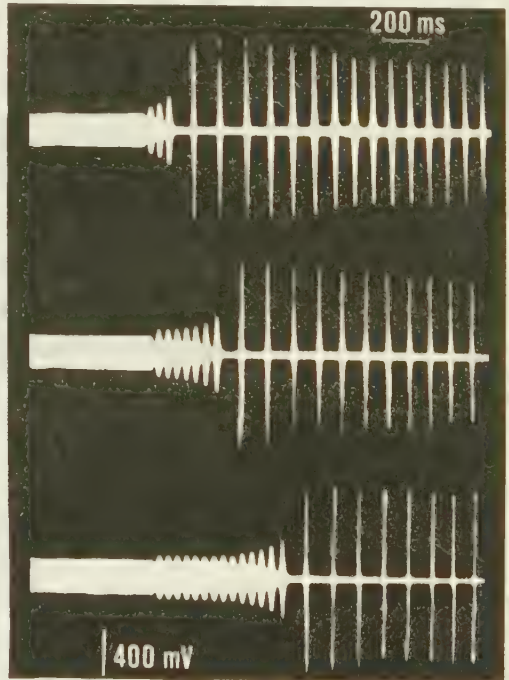
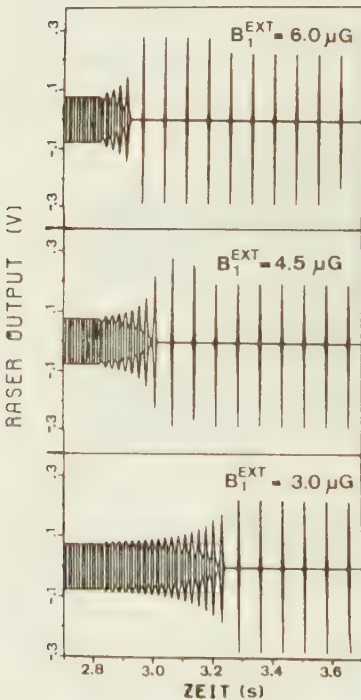


Fig.5.10: Berechnete und gemessene Raserdynamik bei einer erzwungenen kompetitiven Feldkonfiguration.

lauf diese Experiments ist bis zum Nulldurchgang des Ordnungsparameters identisch mit demjenigen von Figur 5.9. Nachher versucht sich das Spinsystem wieder zu ordnen. Sobald aber ein internes Reaktionsfeld aufgebaut wird, wirkt dem das äussere Feld entgegen. Diese erzwungene Instabilität äussert sich in einer Folge von regelmässigen, kurzen Pulsen. In Figur 5.10 sehen wir die gemessene und berechnete Dynamik dieses Experiments für drei verschiedene Amplituden des äusseren Feldes.

Im Zusammenhang mit diesen Experimenten muss auf eine bemerkenswerte Tatsache hingewiesen werden. Beim schwach gepumpten Raser ($1 > p > -1.5$) ist das Verhältnis der kritischen Feldstärke (Y_c) zur Stärke des internen Reaktionsfeldes ($X(Y=0)$) ungefähr 1:100. Dieser Wert kann aus der Gleichung (1.8) und der Beziehung (5.11) bestimmt werden. Die Experimente zeigen allerdings, dass schon wesentlich kleinere (Faktor 10) Felder genügen, um den Phasenübergang 1. Ordnung zu induzieren. Der Grund für diese Diskrepanzen dürfte bei den Fluktuationen liegen. Diese spielen in der Nähe des 'kritischen Punktes' einmal mehr eine entscheidende Rolle. Dies kann mit dem Bild des Potentials (Figur 5.1) erklärt werden. Bevor die Potentialmulde auf dem kompetitiven Ast verschwindet, verläuft das Potential zunehmend flacher. Damit genügen schon kleinste Störungen (Fluktuationen) um das System in die stabile kooperative Potentialmulde zu bringen. Es bedarf auch hier weiterer Experimente, um den Einfluss der Fluktuationen qualitativ und quantitativ zu beschreiben.

ZUSAMMENFASSUNG

Die Entdeckung eines selbststrahlenden Kernspinsystems in einem Festkörper führte uns in das faszinierende Gebiet der Synergetik. Es sind dabei nicht die kohärenten Radiowellen an und für sich - welche sich bekanntlich auf einfache elektronische Art herstellen lassen - sondern es ist die damit verknüpfte kollektive Dynamik der Individuen gekoppelter Vielteilchensysteme, welche das Phänomen des kooperativen Zusammenwirkens so eindrucklich demonstriert. Die relativ leichte Kontrolle und Messbarkeit der Systemparameter erlaubt zudem eine Vielzahl verschiedener Experimente mit grundsätzlich unterschiedlichem Ausgang. Für die Interpretation der experimentellen Befunde konnte überdies ein einheitliches theoretisches Modell entwickelt werden, das einer quantitativen Behandlung zugänglich ist. Sogar die unerwarteten Resultate beim, von aussen, resonant gestörten Raser konnten sehr befriedigend erklärt werden.

Trotzdem möchten wir betonen, dass diese Arbeit eher einen Anfang als einen Schluss bedeutet. Im Laufe des Experimentierens sind wir auf verschiedene Fragen gestossen, für die wir noch keine befriedigende Erklärung gefunden haben. Ein grundsätzliches Problem ist z.B. der Einfluss der Fluktuationen auf die Raserdynamik. Es zeigte sich, dass unsere elementare Behandlung des Nyquist-Rauschens in der Nähe des kritischen Punkts völlig versagt. Da aber gerade der Einfluss stochastischer Störungen auf selbstordnende Systeme /34/ von bedeutsamem aktuellem Interesse ist, dürfte sich die systematische Weiterbearbeitung dieses Phänomens lohnen.

Ein weiteres grundsätzliches Problem betrifft die Raseraktivität in einem äusseren HF-Feld. In den diskutierten Experimenten wurde die Phase zwischen Reaktionsfeld und äusserem Feld elektronisch kontrolliert und dabei nur Phasenwinkel von 0° und 180° zugelassen. Der kritische Ordnungsparameter verhält sich dann eindimensional. Diese rigurose Einschränkung lässt sich lockern. Bei freier und demzufolge zeitlich veränderlichen Phasenlage ist das kritische Verhalten zweidimensional. Der Ordnungsparameter

muss dann als komplexe Grösse /13,32/ betrachtet werden. An Stelle eines Phasenübergangs 1.Ordnung sollte ein Uebergang 2.Ordnung /4,35/ auftreten.

Weitgehend ungeklärt ist ferner das synergetische Verhalten des Rasers, wenn verschiedene NMR-Uebergänge gleichzeitig aktiv werden. Nur das Multimode-Verhalten im Kurzzeitbereich mit seinen sequentiellen Riesenpulsen ist näherungsweise geklärt. Die interessanten Fragen nach dem Konkurrenzverhalten mehrerer Moden, oder nach möglichen Uebergängen zu chaotischen Zuständen rufen nach weitem systematischen Untersuchungen.

LITERATURVERZEICHNIS

- /1/ P.Bösiger, E.Brun, D.Meier, Phys.Rev.Lett. 38 (1977) 602
- /2/ P.Bösiger, E.Brun, D.Meier, Phys.Rev. A18 (1978) 671
- /3/ P.Bösiger, E.Brun, D.Meier, Phys.Rev. A20 (1979) 1073
- /4/ H.Haken, Synergetics, Berlin Springer 1977
- /5/ A.Abragam, The Principles of Nuclear Magnetism, Clarendon Press Oxford (1961)
- /6/ R.Bonifacio, L.A.Lugiato, Optics Comm. 19 (1976) 172
- /7/ H.J.Carmichael, D.F.Walls, Journal of Physics B 10 (1977) L685
- /8/ S.S.Hassan, P.D.Drummond, D.F.Walls, Optics Comm. 27 (1978) 480
- /9/ R.Bonifacio, P.Schwendimann, F.Haake, Phys.Rev. A4 (1971) 302
- /10/ R.Bonifacio, M.Gronchi, L.A.Lugiato, Phys.Rev A18 (1978) 2266
- /11/ R.Bonifacio, L.A.Lugiato, Phys.Rev. A18 (1978) 1129
- /12/ G.S.Agarwal, L.M.Narducci, R.Gilmore, Da Hsuang Feng, Phys.Rev. A18 (1978) 620
- /13/ L.A.Lugiato, Lettere al Nuovo Cimento 23 (1978) 609
- /14/ D.Meier, Diplomarbeit Universität Zürich (1976)
- /15/ A.G.Redfield, Phys.Rev. 98 (1955) 1787
- /16/ B.N.Provotorov, Sov.Phys. JETP 14 (1962) 1126
- /17/ E.Courtens, private Mitteilung
- /18/ P.Bösiger, Dissertation Universität Zürich (1977)
- /19/ B.Derighetti, E.Brun, H.Marxer, Proceedings of Joint ISMAR-AMPERE International Conference on Magnetic Resonance, Delft (NL) 1980
- /20/ V.De Giorgio, M.O.Scully, Phys.Rev. A2 (1970) 1170
- /21/ N.Bloembergen, R.V.Pound, Phys.Rev. 95 (1954) 8
- /22/ C.R.Bruce, R.E.Norberg, G.E.Pake, Phys.Rev. 104 (1956) 419
- /23/ S.Bloom, Journal of Appl. Physics 28 (1957) 715
- /24/ K.V.Vladimirovsky, Nucl. Instr. 1 (1957) 329
- /25/ V.Petricek, M.Odehnal, Nucl. Instr. and Meth. 52 (1967) 197
- /26/ H.Haken in Handbuch der Physik, Band XXV/2c (1970) p.186 ff
- /27/ P.Bösiger, E.Brun, D.Meier, in Optical Bistability Editor: C.M.Bowden M.Ciftan, H.R.Robl, Plenum Press (im Druck)
- /28/ H.M.Gibbs, S.L.Mc Call, T.N.C.Venkatesan, A.C.Gossard, A.Passner, W.Wiegmann, Appl. Physics Lett. 35 (1979) 451
- /29/ H.M.Gibbs, S.L.Mc Call, T.N.C.Venkatesan, Phys.Rev.Lett. 36 (1976) 1135
- /30/ E.Garmire, J.H.Marburger, S.D.Allen, H.G.Winful, Appl. Physics Lett. 34 (1979) 374

- /31/ E.Garmire, J.H.Marburger, S.D.Allen, Appl. Physics Lett. 32 (1978) 320
- /32/ C.R.Willis in Optical Bistability, Editor: C.M.Bowden, M.Ciftan, H.R.Robl, Plenum Press (im Druck)
- /33/ P.Bösiger, E.Brun, D.Meier in Dynamics of Synergetic Systems, Editor: H.Haken, Springer 1980
- /34/ W.Horsthemke, in Dynamics of Synergetic Systems, Editor: H.Haken, Springer 1980
- /35/ D.F.Walls, private Mitteilung

VERDANKUNGEN

An dieser Stelle möchte ich all denen danken, die in irgend einer Form zum guten Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Allen voran gebührt der Dank Herrn Prof. Dr. E.Brun, der mit seinem grossen Interesse und seinen Ideen diese Arbeit in mancher Hinsicht gefördert hat.

Herrn Dr. P.Bösiger danke ich für seine grosse Hilfe bei den Messungen und seine Unterstützung bei den theoretischen Arbeiten und Auswertungen. Herrn Dr. B.Derighetti danke ich für seine vielen Tips und Ratschläge im experimentellen wie auch im theoretischen Bereich.

Den Kollegen vom Institut danke ich für die freundschaftliche Atmosphäre und dem schweizerischen Nationalfonds für die gewährte finanzielle Unterstützung.

LEBENS LAUF

Name und Vorname: Meier Dieter

Heimatort: Unterkulm AG

Geburtsdatum: 24. Juni 1949

Geburtsort: Brugg AG

Besuchte Schulen:

- | | |
|-------------|---|
| 1956 - 1961 | Primarschule in Windisch |
| 1961 - 1965 | Bezirksschule Brugg |
| 1965 - 1968 | Aargauische Kantonsschule in Aarau
Realabteilung des Gymnasiums |
| 1968 - 1971 | ETH Zürich, Abteilung IX |
| 1971 - 1976 | Universität Zürich
Philosophische Fakultät II
Hauptfach: Physik |
| 1976 | Diplom in Experimentalphysik |

Stellung:

- | | |
|-----------|---|
| seit 1976 | Assistent und wissenschaftlicher Mitarbeiter am Physikinstitut der Universität Zürich bei Prof. E.Brun, unter dessen Leitung die Dissertation entsteht. |
|-----------|---|

Besuchte Vorlesungen und Uebungen bei folgenden Dozenten der Universität Zürich:

Benn, Brinkmann, Brun, Gimmi, Heitler, Hess, P.F.Meier, V.Meyer, K.A.Müller, Niederer, Oswald, Pixley, Rasche, Scharf, T.Schneider, Staub, Steiner, Thellung, Waldner, Woodtli.

